

Tartu Ülikool  
Füüsika Instituut

Jasper Ristkok

**Laserindutseeritud plasma ruumiline ning  
ajaline areng argoonis ja lämmastikus**

Bakalaureusetöö (6 EAP)

Füüsika eriala

Juhendaja: PhD Indrek Jõgi

Tartu 2019

# Sisukord

<b>Sissejuhatus.....</b>	<b>3</b>
<b>1. Teooria.....</b>	<b>5</b>
1.1. Laserindutseeritud plasma spektroskoopia.....	5
1.1.1. LIBS ITERis.....	5
1.1.2. LIBS meetod.....	6
1.1.3. Kalibratsioonivaba LIBS.....	7
1.2. Plasmatombu ja kiirguse käitumine.....	8
1.2.1. Gaasikeskkond.....	8
1.2.2. Fotod.....	8
1.2.3. Spektrid.....	9
<b>2. Eksperiment.....</b>	<b>11</b>
2.1. Katsed.....	11
2.1.1. Katseseadmete ja mõõtmiste ettevalmistuse kirjeldus.....	11
2.1.2. Fotod.....	13
2.1.3. Spektrid.....	13
2.2. Andmetöötlus.....	14
2.2.1. Pythoni kood.....	14
2.2.2. Andmetöötluse 2. etapp.....	17
2.3. Tulemused.....	17
2.3.1. Plasmatombu levimine.....	17
2.3.2. Joone laius ja plasmatombu kiirguse intensiivsus.....	21
<b>Kokkuvõte.....</b>	<b>26</b>
<b>Summary.....</b>	<b>28</b>
<b>Kasutatud kirjandus.....</b>	<b>29</b>
<b>Lisad.....</b>	<b>31</b>
<b>Tänuavaldused.....</b>	<b>38</b>

# Sissejuhatus

Inimkonna kasvava energiavajaduse rahuldamiseks sobiks hästi tuumasünteesi kasutamine. Tuumasüntees on protsess, kus väga kõrge temperatuuri juures ühinevad kerged tuumad, tekitades uue, raskema tuuma, andes seejuures ära energiat. Sama protsess on ka Päikese energiaallikaks. Viimase sajandi vältel on üritanud inimkond seda energiaallikat ära kasutada, kuid seni ehitatud tuumasünteesireaktorid on vajanud rohkem energiat, kui nad välja on andnud. Praegu ehitatakse Lõuna-Prantsusmaale suurimat tokamak tüüpi tuumasünteesireaktorit ITER (*International Thermonuclear Experimental Reactor*), mis arvutuste järgi hakkab tootma 10 korda rohkem energiat, kui ta käivitamiseks vaja, ning mis suudab reaktsiooni ise käimas hoida. [1]

Kütusena kavatakse ITERis kasutada vesinikuisotoopide deuteeriumi ja tritiumi segu  $1,5 \cdot 10^8 \text{K}$  temperatuuri juures. Paraku koguneb radioaktiivset tritiumi tokamaki seintesse ja ohutusnõuded kohustavad tritiumi koguse jälgimist. Tervislikel põhjustel on hinnanguline lubatud tritiumi kogus ITERis vaid 700g [2].

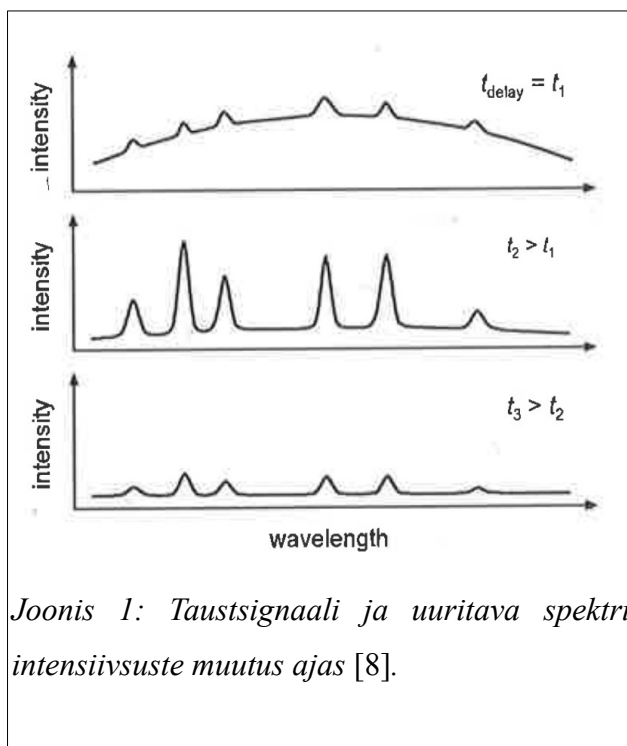
On otsustatud, et tritiumi koguse uurimiseks kasutatakse laserseire meetodit. Laserseireks saab kasutada näiteks laserindutseeritud desorptsioonspektroskoopiat (LIDS, *Laser-Induced Desorption Spectroscopy*) või laserindutseeritud ablatsioonspektroskoopiat (LIAS, *Laser-Induced Ablation Spectroscopy*). Üks sobivatest variantidest on laserindutseeritud plasma spektroskoopia (LIBS, *Laser-Induced Breakdown Spectroscopy*), mille korral kasutatakse fookuseeritud laserimpulssi, mis on piisavalt suure pindvõimsusega, et eemaldada seinast õhuke kiht ja tekitada sellest plasma. Saadud plasma kiirguse spektrist määratakse erinevate keemiliste elementide sisaldus kooritud kihis. [3]

LIBS on paljulubav analüüsimeetod, millel on kaks kasutusviisi: kalibreeritav ning kalibratsioonivaba LIBS. Mõlemal on aga omad puudused. Kvantitatiivse info saamiseks vajab LIBS kalibreerimist erineva koostisega kalibratsioonistandardite abil. Samas alternatiivse, kalibratsioonivaba LIBSi puhul on vaja teha teatud eeldusi plasmatombu omaduste kohta. ITERis on seina koostise varieerumise tõttu LIBSi kalibreerimine raskendatud. Seetõttu kaalutakse kalibratsioonivaba LIBSi kasutamist, kuid selle jaoks on vajalik plasma termodünaamiline tasakaal [4]. See tähendab ka, et üheks eelduseks on kiirgavate ühendite ühtlane paiknemine plasmatombus [5, ptk 3]. Viimane nõue ei pruugi aga täidetud olla, kuna kerged ja rasked elemendid võivad liikuda plasmas erinevalt [6]. Seetõttu võib kalibratsioonivaba LIBS anda vääraid tulemusi ning on tarvis kontrollida plasma käitumist ja ühendite kiirguse jaotust plasmatombus.

Seoses LIBSi abil vesinikuisotoopide koguse määramisega reaktori seintes on üks praeguseni lahtine küsimus seotud reaktoris oleva gaasikeskkonna (argoon või lämmastik) mõjuga isotoopide kiirgusele. Tõenäoliselt kasutatakse ITERis hoolduse ajal lämmastikku, kuid ITERi arengukonverentsidel on räägitud, et on mõeldav ka triitiumi mõõtmiseks vaadeldavasse kohta argooni puhumine. LIBSiga mõõdetud spektrid sõltuvad gaasikeskkonna koostisest ja selle rõhust.

Käesoleva uurimuse eesmärk on plasmatombu ja selles olevate elementide kiirguste ruumilise ja ajalise jaotuse iseloomustamine lämmastiku- ja argoonikeskkonnas erinevatel rõhkudel. Eesmärgi saavutamiseks salvestatakse laserindutseeritud plasmast fotod ja registreeritakse spektrid. Prooviks on vesinikulisandiga molübdeen. Vesinik käitub sarnaselt triitiumile ning molübdeen käitub sarnaselt volframile, simuleerides olukorda ITERis.

Kindlatel ajahetkedel pildistatakse plasmatombu ICCD (*Intensified Charge-Coupled Device*) kaameraga ning intensiivsuse jaotuse uurimisel leitakse plasmatombu keskmise ja levikufrondi asukoht eri ajahetkedel. Lisaks registreeritakse spektrid plasmatombu levikusihis eri kaugustel ning võrreldakse tulemusi fotodega. Silmas tuleb ka pidada, et lühikestel viiteaegadel signaaltastsignaali suhe suureneb, aga suurematel viiteaegadel, viiteaegadel üle mikrosekundi, signaali intensiivsus väheneb ning seetõttu saab mõõtmisi teha vaid kindlas ajavahemikus [7] (vt. joonis 1). Lõpuks määratakse katseparameetrid (gaas, rõhk ja viiteaeg), millega on kõige parem hinnata vesiniku isotoopide kogust, ning arutletakse kalibratsioonivaba LIBSi kasutamise potentsiaali üle uuritud tingimustel.



Joonis 1: Tastsignaali ja uuritava spektri intensiivsuste muutus ajas [8].

Töö koosneb kolmest osast. Esimeses, teooriaosas, kirjeldatakse LIBSi olemust ja sobilikkust ITERis. Lisaks kirjeldatakse plasmatombu käitumist laservälke ajal ning seda, kuidas eri keskkonnad ja tingimused katse käiku mõjutavad. Käsitletakse ka fotosid ning spektreid elementide eristamise seisukohast. Teises osas kirjeldatakse eksperimenti, andmetöötlust ja tulemusi. Viimases osas, kokkuvõttes, tuuakse välja tulemuste alusel tehtud järeldused.

# 1. Teooria

## 1.1. Laserindutseeritud plasma spektroskoopia

### 1.1.1. LIBS ITERis

ITER on Lõuna-Prantsusmaale ehitatav eksperimentaalne tokamak tüüpi tuumasünteesireaktor. See saab olema suurim tuumasünteesireaktor ning esimene omasuguste seas, mis suudab reaktsiooni ise käimas hoida ning tekitab 10 korda rohkem energiat, kui reaktsiooni käivitamine vajab. [1]

Reaktoris kuumutatakse deuteeriumi ja triitiumi sisaldav kütus plasmaks, mis on kõrge temperatuuriga suurusjärgus  $1,5 \cdot 10^8 \text{K}$  ning milles toimub termotuumasüntees. Reaktsiooni käigus sünteesitakse deuteeriumist ja triitiumist heelium ning vabaneb neutron. Neutron kannab reaktsioonist vabanenud energia endaga kaasa ning neeldub reaktori seinas, kuumutades seda. Kuumus teisendatakse vee ja auruturbiinidega elektrienergiaks.

Kõrge temperatuuriga plasmat, hoitakse seinte vastu puutumast elektromagnetitega. Samas alati pole võimalik hoida plasmat seintega kokku puutumast ning seetõttu ladestub osa kütust ja reaktsioonisaadusi seintesse. Seina ladestunud kütuse hindamine on oluline ohutuskalutlustel, sest triitium on radioaktiivne ning juba 700 grammi ladestumisel osutab see tööliste terviseohtu. [2]

Divertor on ITERi osa, millega eemaldatakse plasmast sünteesisaadused ning mis puutub kokku suure soojusvooga. Seetõttu valmistatakse divertor suurima sulamissoojusega metallist – volframist [9]. Kuna kõige rohkem triitiumi koguneb divertorisse, siis on sealse seina uurimine ohutuse seisukohast kõige olulisem.

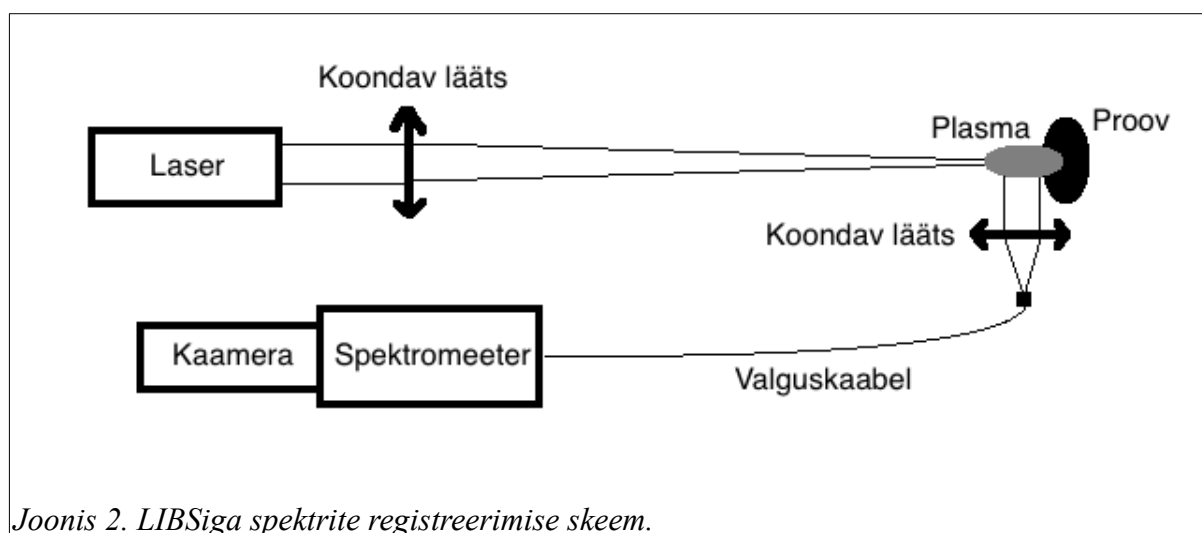
Triitiumi koguse seiramine toimub reaktori hooldusperioodidel, mille ajal täidetakse reaktor tõenäoliselt lämmastikuga. Lisaks on vajadusel võimalik puhuda triitiumi seiramise ajal uuritavasse seina piirkonda mõnda muud gaasi, näiteks argooni.

Seina koostise seiramiseks sobib hästi LIBS, sest sellel on kaugseire võimekus ja uuritavat pinda pole vaja mõõtmiseks ette valmistada. Nii on võimalik määrata seina ladestunud reaktsioonisaaduse ja kütuse kogust. Kuna seiramine leiab aset divertoris, siis sisaldub LIBSiga tekitatud plasmas koos sadestunud ainetega volframi.

### 1.1.2. LIBS meetod

Üks levinud aine koostise määramise meetod on aatomemissioonspektroskoopia (AES). Meetod seisneb aatomite ergastamises ning seejärel nende kiirgusspektri analüüsimises [10]. Spektris sisalduvate joonte lainepikkuste järgi saab teada aine elemendilise koostise ning joonte intensiivsuste järgi saab määrata aines esinevate elementide kontsentratsioonid. Aatomite ergastamiseks on mitmeid viise. Ajalooliselt on seda tehtud näiteks Bunseni põleti abil, kuid laseri leiutamisega avanes uus võimalus aatomite ergastamiseks laseri abil ning tekkis AESi haru: LIBS.

Tüüpiline LIBS meetod kasutab impulss-laserit, valgust suunavaid optilisi seadmeid ning spektri salvestamiseks spektromeetrit. Laserimpulss juhitakse ja fokuseeritakse proovi pinnale, tagades väga suure võimsustiheduse suurusjärgus  $1 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$ , mistõttu väike osa proovist aurustub. Tekkinud plasma paisub ning kiirgab proovile iseloomulikku kiirgust. See kiirgus kogutakse spektromeetrisse ning vastav spekter salvestatakse hilisemaks analüüsiks (vt. joonis 2).



Joonis 2. LIBSiga spektrite registreerimise skeem.

LIBSi eelis teiste AESi meetodite ees on asjaolu, et LIBSiga toimub materjali ergastamine optiliselt ehk seda saab kasutada proovist kaugel olles. Lisaks ei tule proovi eelnevalt ette valmistada ja tulemused saavad sekundite jooksul. Vajadusel on võimalik korduvate laserimpulssidega proovi pinda puhastada, sest üksikimpulss kahjustab proovi vähe. Samas on võimalik korduvate impulssidega uurida proovi sisemuse koostist, kaevates iga impulsi sügavamale. [10]

LIBSi miinuseks on asjaolu, et tekitatud plasma varieerub erinevate laserimpulsside ja ajaga [11]. See tähendab, et erinevad mõõtmised annavad teatud määral erinevad tulemused ka sama aine puhul, kuid üldiselt jäävad nende erinevused sõltuvalt mõõtevahendist ja uuritavast materjalist alla 10% [10].

### 1.1.3. Kalibratsioonivaba LIBS

LIBSi korral registreeritakse elementidele vastavate spektrijoonte intensiivsust. Viimane sõltub lisaks elementide kontsentratsioonile ka plasma parameetritest, mis omakorda sõltuvad materjali omadustest. Seetõttu on intensiivsuste sidumiseks aines sisalduvate elementidega vaja läbi viia eelnev kalibreerimine väga paljude olukordade jaoks, arvestades ka materjali kooslust ja struktuuri. Tihti pole aga võimalik eelnevalt väga palju erinevaid materjale kalibreerimiseks kasutada ja seetõttu pole võimalik klassikalise LIBSiga ka tundmatuid proove uurida. [5, ptk 1]

Olukorra lahendab kalibratsioonivaba LIBS, millega on võimalik tuvastada huvipakkuva elemendi kontsentratsiooni eelneva kalibreerimiseta. Samas on ka sellel meetodil puudused. Kalibratsioonivaba LIBSi kasutamise eeldused on järgnevad [5, ptk 3]:

1. plasmas kiirgavate ja uuritavas objektis olevate elementide kontsentratsioonid on samad;
2. plasma on ajalises ja ruumilises lokaalses termodünaamilises tasakaalus;
3. plasma on ruumiliselt ühtlane ning plasmas pole kiirgused ruumiliselt eraldunud;
4. spektrijooned on optiliselt õhukesed.

Kui esimene eeldus pole täidetud, esineb elementide kontsentratsioonide määramisega probleeme kõigil laserablatsioonil põhinevatel meetoditel, kaasa arvatud LIBSil. Selle eelduse rikkumisel väheneb kergema massiga ja madalama kontsentratsiooniga elemendi (ITERis triitiumi) koguse määramise täpsus arvestatavalt. Kalibreerimisel põhinevat LIBSi mõjutab esimese eelduse rikkumine vähem, sest mõõtmine toimub kalibreerimisega samas olukorras ning seega lõplikul vesiniku koguse hindamisel viga taandub [5, ptk 4.1].

Materjalis leiduvate elementide suhteliste kontsentratsioonide arvutamiseks on vaja teada plasmas olevate elektronide temperatuuri ning kontsentratsiooni [5, ptk 3.2]. Viimaste leidmiseks on oluline termodünaamilise tasakaalu tingimuse täitmine.

Kiirguse ruumilise varieeruvuse ehk plasma homogeensuse nõue on tihti laserindutseeritud plasma puhul rikutud. See tuleneb tekitatud plasmatombu mittehomogeensest iseloomust ja põhjusest, et plasmatomp allub keerukale termodünaamilisele liikumisele. [5, ptk 4.3]

Optiliselt õhukesed jooned on enamasti tagatud elementide jaoks, mille kontsentratsioonid on väikesed. Suure kontsentratsiooniga põhielementide nagu molübdeeni jaoks võib omaneeldumine osutada probleemiks.[12]

## **1.2. Plasmatombu ja kiirguse käitumine**

### **1.2.1. Gaasikeskkond**

Plasmatombu levimine sõltub gaasikeskkonna rõhust. Madalal rõhul paisub plasmatomp kiiremini, sest seda pole takistamas gaasimolekulid. Seetõttu katab plasmatomp madalal rõhul suurema ruumala kui samal ajahetkel kõrgel rõhul. Kuna madalal rõhul on plasmatomp jaotunud suurema ruumi peale, on valgusfiibriga spektrit mõõtes selle kiirguse intensiivsus madalam [13].

On uuritud ja täheldatud, et kõrgete rõhkude juures on LIBSi spekter argoonkeskkonnas intensiivsem kui lämmastikkeskkonnas [14 ja 13]. Selle põhjus võib olla, et võrreldes lämmastikuga, esineb argoonis suurem varjestusefekt, mis tähendab, et rohkem laserimpulsi energiast neeldub objektist eraldunud plasmatombus, ergastades seda veel enam [13].

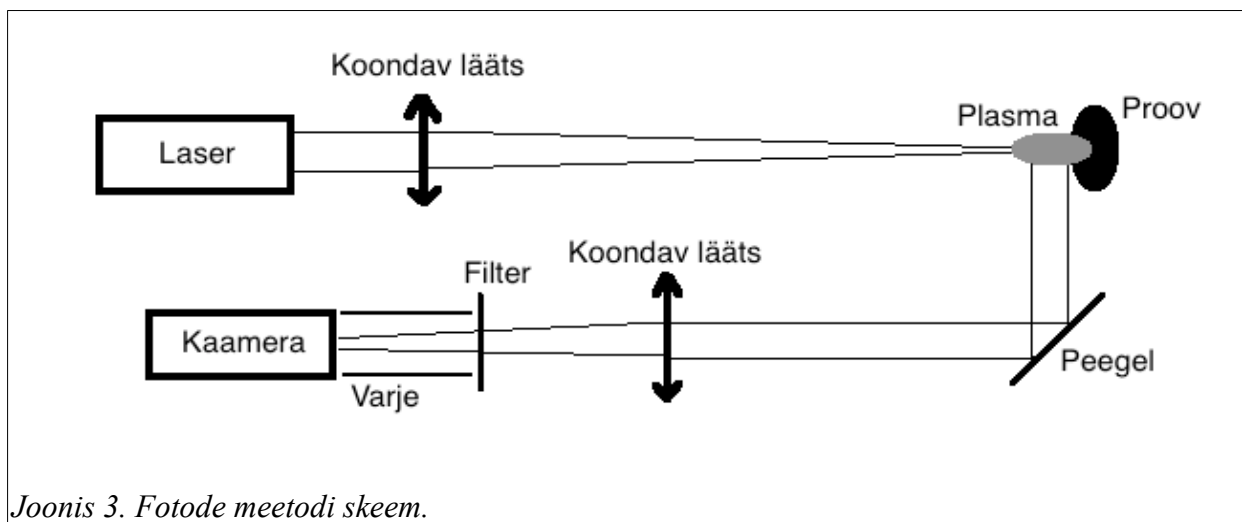
Kalibratsioonivaba LIBSi 3. eelduse seisukohalt on tehtud järgmine tähelepanek: erineva massiga elementide kiirgused võivad olla ruumiliselt eraldunud. See tuleneb asjaolust, et kergemad elemendid levivad kiiremini, kuna nende difusioon on suurem. Samuti on efekt suurema massierinevusega elementide nagu näiteks triitiumi ja volframi korral suurem [6]. Levikut mõjutab ka gaasi rõhk ning eeldatavasti ka gaasikeskkond. Seetõttu võib kiirguste ruumiline eraldatus olla oluline ka ITERi seintes triitiumi määramisel.

Kiirguse ruumilist jaotust plasmatombus saab uurida mitmel erineval meetodil. Üks võimalus on registreerida plasmatombust fotod ja kasutada erinevatele elementidele vastavate kiirguste eristamiseks filtreid. Teine võimalus plasmatombu kirjeldamiseks on spektrite registreerimine erinevatest ruumiipiirkondadest.

### **1.2.2. Fotod**

Foto eeliseks on see, et info plasmatombu asukoha ja kuju kohta saadakse ühe registreerimisega. Erinevate elementide kiirguste eristamiseks on võimalik kasutada filtrit (vt. joonis 3), mis jätab alles vaid huvipakkuva piirkonna, kuid sel juhul ei tohi filtri läbilaskvuspiirkonnas olla teiste elementide kiirgust. Filter peab läbi laskma kogu uuritavale elemendile vastava kiirguse, seda ka juhul, kui nt. vesiniku joon on laienenud.





Laia läbilaskvuspiirkonnaga filtriga on aga üheks probleemiks, et vesinikuisotoopide Balmeri  $\alpha$ -jooned on vaakumis üsna lähestikku (tritium - 656,0; deuterium - 656,1 nm; vesinik - 656,3 nm). Lähedal on volframi jooni (653,3; 653,8; 656,3 ja 657,4 nm) ning molübdeeni jooni (649,3; 652,0; 661,9 ja 665,0 nm). Metallid võivad laia läbilaskvusega filtri korral tulemusi mõjutada. Volframi jooned on 656 nm läheduses molübdeeni omadest tugevamad ning 656,3 nm joon on praktiliselt vesiniku joonega samas kohas, raskendades volframi eraldamist muust spektrist. Fotode meetodi kasutamisel on vesinikuisotoopide eristamine väga keeruline, kui mitte võimatu, sest vesinikuisotoopide eristamiseks on vaja väga kitsa läbilaskvuspiirkonnaga filtrit. Volframi 656,3 nm joone tõttu pole fotode kasutamisel võimalik vesiniku ja volframi kiirgust täielikult eraldada.

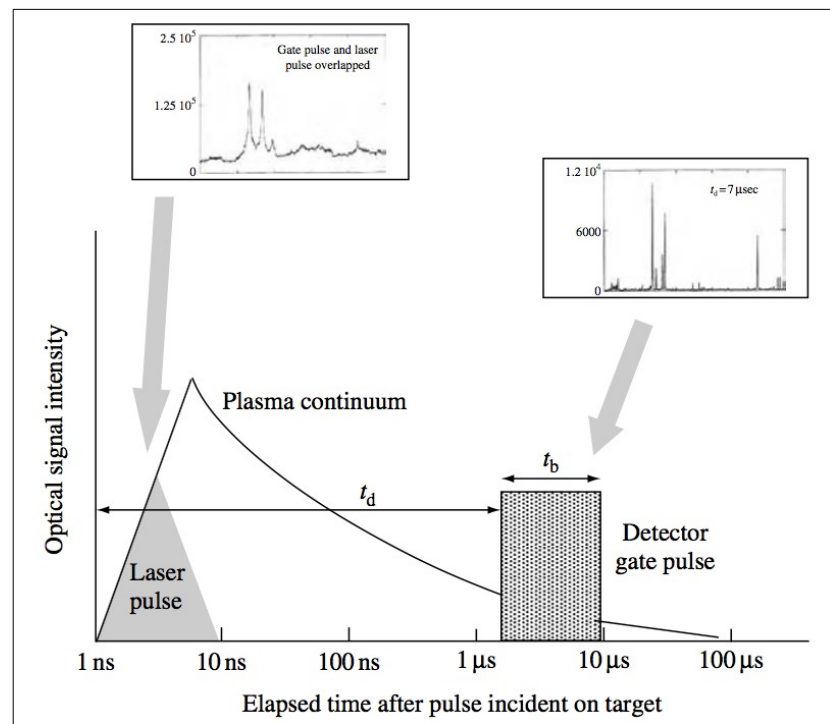
Kui vesiniku ja volframi kiirgused peaksid lähtuma ruumis üksteisest piisavalt kaugelt, võib see tähendada, et fotode meetodiga on võimalik mõõta vesiniku-volframi suhet täpsemini kui spektriga. Selle põhjuseks on, et foto peal on sel juhul võimalik ruumiliselt eraldada vesiniku ja volframi kiirguste piirkonnad ning seejärel vastavate piirkondade intensiivsused leida. Fotode meetod sai valitud, sest sellega on võimalik saada kiirguse hea ruumiline kirjeldus. Viimane oli ka töö põhieesmärk.

### 1.2.3. Spektrid

Spektrite kasutamise eelis on võimekus eristada eri elementide kiirgusi üksteisest ning taustsignaalist. Samas plasma levikut määrates tuleb spektreid kasutades iga ruumpunkt eraldi registreerida. Punktide registreerimise tihedusest sõltub ka leviku kirjeldamise ruumiline lahutusvõime.

Eelnevalt on täheldatud, et spektri mõõtmisel esineb mitmeid probleeme. Lühikestel viiteaegadel esineb suur taustkiirgus, mille tõttu on raske eristada huvipakkuvaid jooni (vt. joonis 4). Sel põhjusel on raskendatud ka fotode tõlgendamine. Samas pikemal ajal langeb joone enda intensiivsus. Lisaks omab joonte intensiivsusele mõju ka kasutatav rõhk. [7]

Kuna ITERis on nii vesinikku, deuteriumi kui ka tritiumi, tuleb neid eristada. Vesinikuisotoopide joonte lähedaste lainepikkuste tõttu on tarvis hea lahutusvõimega



Joonis 4: LIBSi viiteaja ja säriaaja mõju saadud spektrile [7].

spektromeetrit. Üheks probleemiks võib olla ka omaneeldumine ehk olukord, kus plasma neelab iseenda kiirgust ja seega ei jõua spektromeetrini plasma kaugema osa kiirgus [12]. Viimane kehtib ka fotode salvestamisel. Lisaks on probleemne ka asjaolu, et esineb joone Starki laienemine.

Starki laienemine leiab aset, kuna plasmas on palju laengukandjaid. Ka juhul, kui väline elektriväli puudub, mõjutavad plasmas olevad laengukandjad üksteist omaenda elektriväljaga. See elektriväli mõjutab aatomergastuse energiatasemeid, mis põhjustab elektriväljaga proportsionaalse energiatasemete lõhenemise. Kuna plasmas liikuva laengukandjad on aatomi kiirgamise ajal erineval kaugusel, on ka neile mõjuv elektriväli erinev. Tulemuseks on registreeritud spektrijoonte laienemine.

Lisaks Starki laienemisele esineb rõhust tingitud joone laienemine: kui parasjagu kiirgav osake peaks põrkuma teise osakesega, lõppeb kiirgamisprotsess ning lühenenud kiirgamise aja tõttu suureneb kvantmehaanikast tulenevalt energia määramatus. Sel põhjusel spektrijoon laieneb. Suurematel rõhkudel laienevad spektrijooned rohkem, eriti kergetel elementidel nagu vesinik ja tema isotoobid [15].

## 2. Eksperiment

### 2.1. Katsed

Siin peatükis on välja toodud eksperimendiks kasutatud katseseadmed ja -vahendid ning meetodid, mida kasutati nii fotode kui spektrite jäädvustamisel. Eksperiment viidi läbi Tartu Ülikooli Füüsika Instituudis Plasmafüüsika laboris. See toimus kahes osas: 2018 kevadel jäädvustati fotod ja 2019 kevadel spektrid.

#### 2.1.1. Katseseadmete ja mõõtmiste ettevalmistuse kirjeldus

Seade	Mudel
Nd:YAG laser	Quantel YG981C
Czerny-Turner tüüpi spektromeeter	MDR-23
ICCD kaamera	Andor iStar340T
Õlirotatsioonpump	Oerlikon Leybold Vacuum AMM 71Z BA4
Vaakummeeter	MKS DualTrans™ 910 Transducer
Samm-mootor	Mclennan HT18C330

*Tabel 1. Katseseadmete tüüp.*

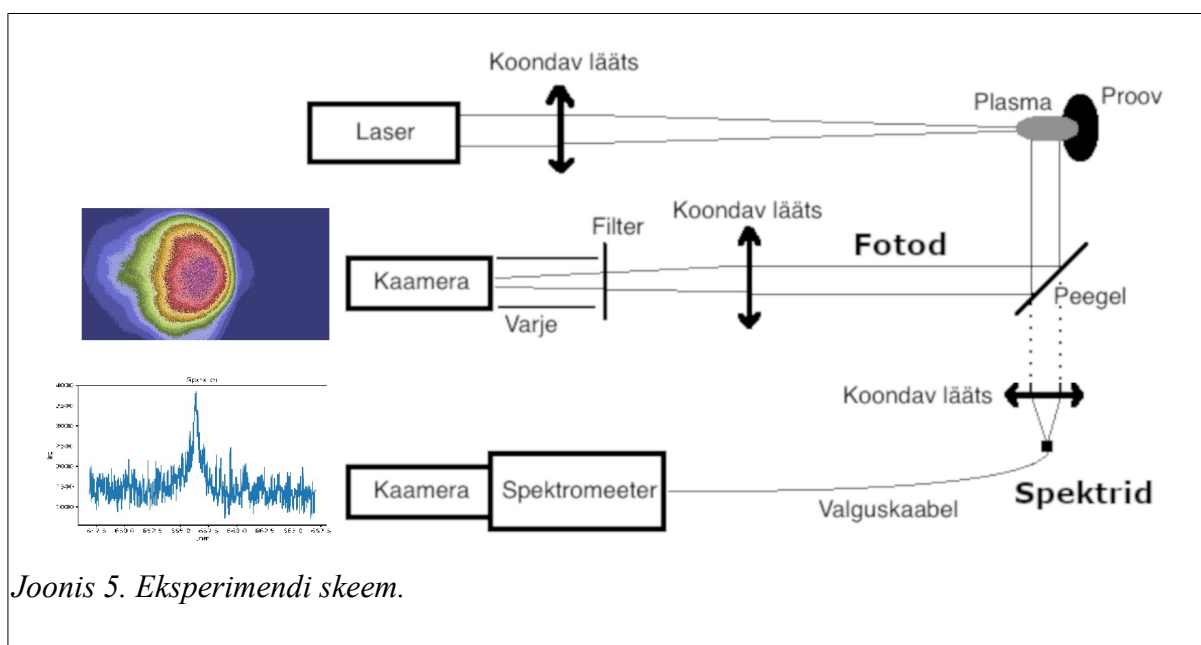
Eksperimendiks kasutati impulssrežiimis ja lainepikkusel 532 nm töötavat Nd:YAG laserit (vt. tabel 1). Iga laserimpulsi energia oli 60 mJ, kestvus 6 ns ning impulsside sagedus oli 1 Hz. Laserkiire teel oli kvartsläätis, mis koondas kiire objektile ( $0,7 \pm 0,5$ ) mm diameetriga alale. Seega oli energia pindtihedus 13,6-18,1 J/cm<sup>2</sup> ja pindvõimsus 2,3-3,0 GW/cm<sup>2</sup>, kui eeldada, et laserkiire intensiivsus ei vähenenud enne objektini jõudmist. Enne kambri aken oli ka katik, mis suleti objekti kaitsemiseks laseri eest, kui mõõtmisi ei toimunud.

Roostevabast terasest vaakumkamber, milles eksperiment aset leidis, oli labori jaoks LIBSiga mõõtmisteks eraldi kokku monteeritud. Kamber oli pealtavatava luugiga, mille keskel oli aken ning kambri külje peal oli iga 45° tagant kvartsist aken (vt. lisa 1). Küljel, kuspoolt laserkiir sisenes, oli aken veidi viltu seatud, et objektilt tagasipeegeldav laserkiir lendaks seadmete asemel laua pihta.

Katseobjektiks oli paarisentimeetrise läbimõõduga vesinikulisandiga molübdeenplaat, mille vesiniku sisaldus polnud teada. Vesinikulisandiga molübdeeni kasutati seetõttu, et molübdeen ja vesinik ning vastavalt ITERi tingimustes olevad volfram ja triitium käituvad üksteise suhtes sarnaselt. Katseobjekt asetati objektihoidjale nii, et laserkiir ja plaat oleksid risti.

Gaasi vahetades pumbati eelneva gaasiga täidetud kamber  $10^{-3}$  torrisele rõhule, lasti uus gaas sisse kuni kambris oli 760 torri, pumbati kamber  $10^{-3}$  torrisele rõhule ning seejärel suurendati rõhku järkjärgult ja tehti iga huvipakkuva rõhu juures katsed. Gaasi kahekordne väljapumpamine tagas uue gaasi kõrge puhtuse. Lisaks soojendati kambrit pidevalt, et seinale sadestunud aine paremini aurustuks ja pumpamisega kambrist välja.

Laseri poolt tekitatud plasmatombu kiirgusest tehti ICCD kaameraga fotod või registreeriti Czerny-Turner tüüpi c.a 70 pm aparaatfunktsiooniga spektromeetriga ühendatud kaamera abil spektrid (vt. tabel 1 ja joonis 5). Kasutatud kaameral oli müra vähendamiseks sisseehitatud kaamerat jahutav Peltier' element. Arvutis kasutati kaameraga fotode ja spektrite registreerimiseks programmi Andor SOLIS USB. Lisaks sünkroniseeriti kaamera ja laser impulssgeneraatori abil. See tagas olukorra, kus laseri impulss ja kaamera viiteaja alghetk olid sünkroonis.



Joonis 5. Eksperimendi skeem.

Iga katseseeria jaoks tehti katseobjektile testlasud eelmise seeria asukohta, et saada optimaalsed kaamera seaded. Optimaalsed seaded määrati olukorras, kui signaali intensiivsus oli tausta suhtes piisavalt kõrge. Katseseerias kasutati kõigil katsetel säriajana esimese katse viiteaja pikkust ning järgnevad katsed tehti viiteaegadel, mil lõppes eelmise katse registreerimine.

Peale kaamera seadete määramist liigutati kahedimensionaalselt liikuva samm-mootoriga objekt 1,7 mm edasi ning kontrolliti justeerimislaseri ja monokliga, kas uus asukoht on sobiv. Samm-mootori kasutamine võimaldas liigutada katseobjekti kambrit avamata.

Enne katseseeria alustamist avati katik ja lasti paar lasku objekti pihta, et puhastada selle pind potentsiaalselt sinna sadestunud ainetest. Peale esimest 5-6 lasku püsis vesiniku intensiivsus järgnevatel laskudel konstantsena.

### **2.1.2. Fotod**

Fotode jäädvustamisel asetati plasmatombu küljel oleva akna taha  $45^\circ$  nurga all peegel. Plasmatombu kiirguse teele sätiti koondav lääts nii, et kaamera maatrikselemendile satuks fookuses ja suurendatud kujutis (suurendus 1,28 korda). Suurendus sätiti paika selle alusel, et plasmatomp ka madalal rõhul kaadrisse jääks. Suurenduse määramiseks tehti katseobjekti ees millimeeter-skaalaga foto pikslite ja ruumiliste kauguste kokkuviiamiseks. Kaamera maatrikselemendi ette pandi varjena kasutatav musta värvi toru, et vähendada küljelt kaamerasse jõudvat valgust. Vesiniku kiirguse uurimiseks sätiti osade piltide jaoks kaamera ette filter, mis jättis alles vaid vesiniku ergastuse joone (vt. joonis 5). Lainepikkuste vahemik, mille puhul filtri läbilaskvus ületas 5% oli 650,15-662,36 nm (vt. lisa 2).

Katsed viidi läbi nii, nagu peatükis 2.1.1 kirjeldatud - järk-järgult gaasi lisades rõhkudel 3, 10, 30, 100, 300 ja 760 torri. Iga rõhu jaoks tehti katseseeriad järgmistel ajahetkedel: 50, 100, ..., 500 ns; 200, 400, ..., 2000 ns ja 1, 2, ..., 10  $\mu$ s, välja arvatud olukorrad, kui signaali polnud peaaegu üldse näha. Iga katseseeria jaoks seadistati elektronkordistus eelnevate testide põhjal parajaks. Eri katseparameetritega jäädvustati katseseeriad nii argooni kui lämmastiku jaoks – kokku 70 seeriat. Seerias oli keskmiselt 10 ajahetke ja kokku tehti 686 fotot. Iga foto oli summeeritud 5 laserimpulsist.

### **2.1.3. Spektrid**

Spektrite salvestamisel asetati eksperimendi skeemis (joonis 5) näidatud peegli asemele koondav lääts, mis koondas originaalsuuruses kujutise valgusfiibri otsale (vt. joonis 5). Valgusfiiber oli diameetriga 0,8 mm, millega oli ka ruumiline lahutusvõime määratud. Fiibri teine ots oli ühendatud spektromeetri (vt. tabel 1) külge, mis eraldas lainepikkused vahemikus 646,3-667,5 nm.

Valgusfiiber oli nihutatav plasmatombu levimissihis. Algul määrati kauguste vahemik, kus vesiniku ja molübdeeni signaal oli taustast palju tugevam ning seejärel viidi läbi katseseeriad määratud vahemikus eri kaugustel. Katsed viidi läbi mõlemas gaasikeskkonnas rõhkudel 3, 100 ja 760 torri ning järgmistel ajahetkedel: 200, 400, ..., 1200 ns ja 1, 2, ..., 6  $\mu$ s. Kokku tehti 126 katseseeriat. Igas seerias oli 5-6 katset ja kokku registreeriti 686 spektrit. Iga spekter oli summeeritud keskmiselt 4 spektrist.

## 2.2. Andmetöötlus

Fotod ja spektrid olid jäädvustatud labori arvutiga tarkvaras SOLIS, milles oli mitmeid analüüsiks kasulikke tööriistu. Vastav tarkvara oli seotud labori arvutiga ning seetõttu polnud võimalik saadud andmeid väljaspool laborit analüüsida. Teine probleem seisnes selles, et andmeid oli väga palju (3 GB ASCII teksti) ning neid oleks olnud vaja analüüsida ükshaaval.

Probleemide lahendamiseks teisendati SOLIS-e failid ASCII failideks ning kirjutati Python 3 kood. Isekirjutatud koodiga oli võimalik analüüsida andmeid täpselt nii, nagu selle töö raames vaja ning seda sai teha kogu andmehulga jaoks automaatselt. Kirjutatud kood manipuleeris algandmeid ja väljastas iga katse kohta vajalikud andmed, millega LibreOffice Spreadsheeti abil tehti lõplik andmetöötlus.

### 2.2.1. Pythoni kood

Kirjutatud 800-realine kood loeb sisse katseseeria ASCII faili ning eraldab failis olevast katseseeriast üksikud katsed. Kood on võimalikult modulaarne. See tähendab, et vastavalt soovile on võimalik teha järgmisi asju: andmete töötlemine, andmete analüüs ja tulemuste väljastamine, pildi salvestamine.

## Fotode töötlus

Kaamera ümmargusest avast tingituna olid 2048x512 pikslistel fotodel ääred mustad. Kood lõikas infota osa ära ja järele jäid 959x512 pikslised fotod.

Saadud fotod läbisid kaheetapilise töötlemise. Kuna piksli väärtusteks oli intensiivsus, mis definitsiooni järgi on 0-st suurem, loeti 2D pikslimaatriksi minimaalne väärtus müra suuruseks. Müra väärtus lahutati kõigilt pikslitelt.

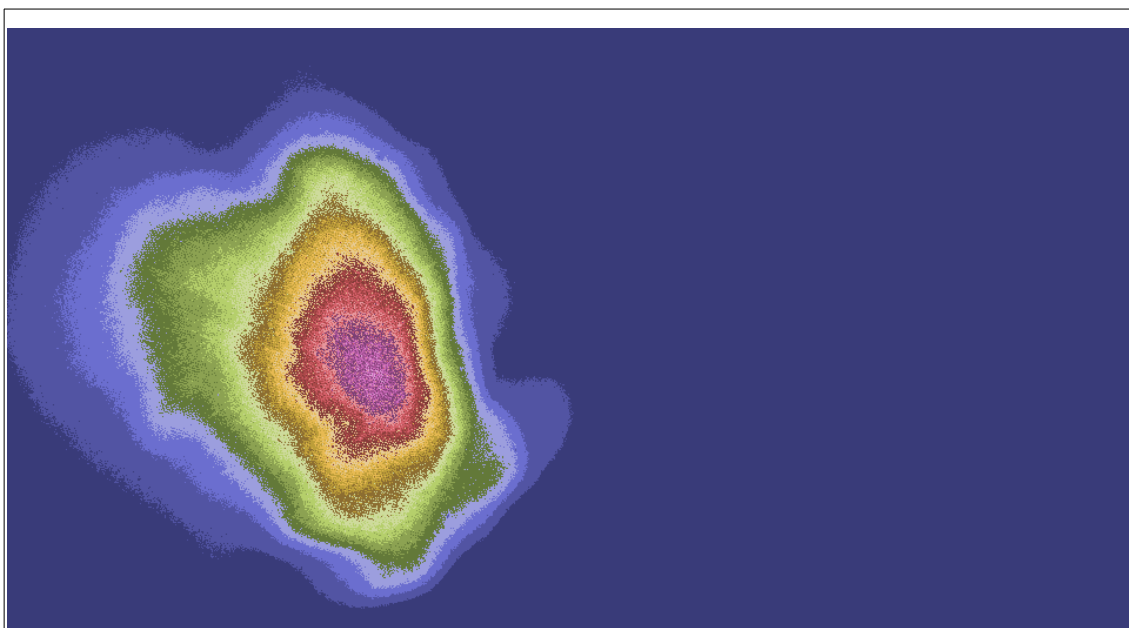
Töötlemise teise etapina itereeriti üle maatriksi 5x5-pikslise ruuduga ning kui ruudus olevate pikslite summa oli väiksem kui 11-kordne müra suurus, siis nulliti ruudu keskmine piksel. Arv 11 tulenes olukorrast, kui plasmatombu äär, mis on 5 piksli suhtes kumer, asus ruudu keskel. Sellise nullimisega itereeriti üle maatriksi kolm korda, et siluda plasmatombu ääri.

Analüüsimisel leiti maatriksi pikslite minimaalne ja maksimaalne väärtus ning väärtuste summa. Lisaks määrati horisontaalteljel plasmatombu levikufront ja plasma kiirguse intensiivseima piirkonna asukoht. Plasmatombu ääreks määrati horisontaaltelje kaugeim piksel, mille väärtus oli

vähemalt 15% pikslimaatriksi maksimaalsest väärtusest. 15% määrati testpiltidelt visuaalse sobitusega.

Tombu intensiivseim piirkond määrati järgneval viisil. Algul itereeriti 9x9 ruuduga üle maatriksi ja leiti maksimaalne ruudu väärtuste summa. Seejärel itereeriti taas 9x9 ruuduga üle maatriksi ja märgiti ülesse asukohad, kus ruudu väärtuste summa oli vähemalt 90% maksimaalsest summast. Saadud asukohtades arvutati 41x41 ruudu summad ja suurima 41x41 ruudu summa puhul määrati vastava ruudu keskmine piksel plasmatombu keskkohaks. Ruudu summa meetodit kasutati, sest üksikute pikslite väärtused varieerusid väga palju ja ei kajastanud tegelikku tombu keskk kohta. Ruudu mõõtmed määrati eelnevalt testpiltidelt, vaadeldes keskk ohtade suurusi.

Piltide salvestamisel kasutati astmelist värvide üleminekut intensiivsuse muutumisega. Värvid tähistasid intensiivsuse suhet maksimaalsesse intensiivsusesse ning iga värv tähistas 5% vahemikku. Niimoodi oli kerge jälgida intensiivsusjooni, plasmatombu piiri ja plasmatombu keskk ohta (vt. joonis 6).



*Joonis 6. Plasmatombu foto, Ar, 30 torri, 1200 ns, filtrita*

## Spektrite töötlus

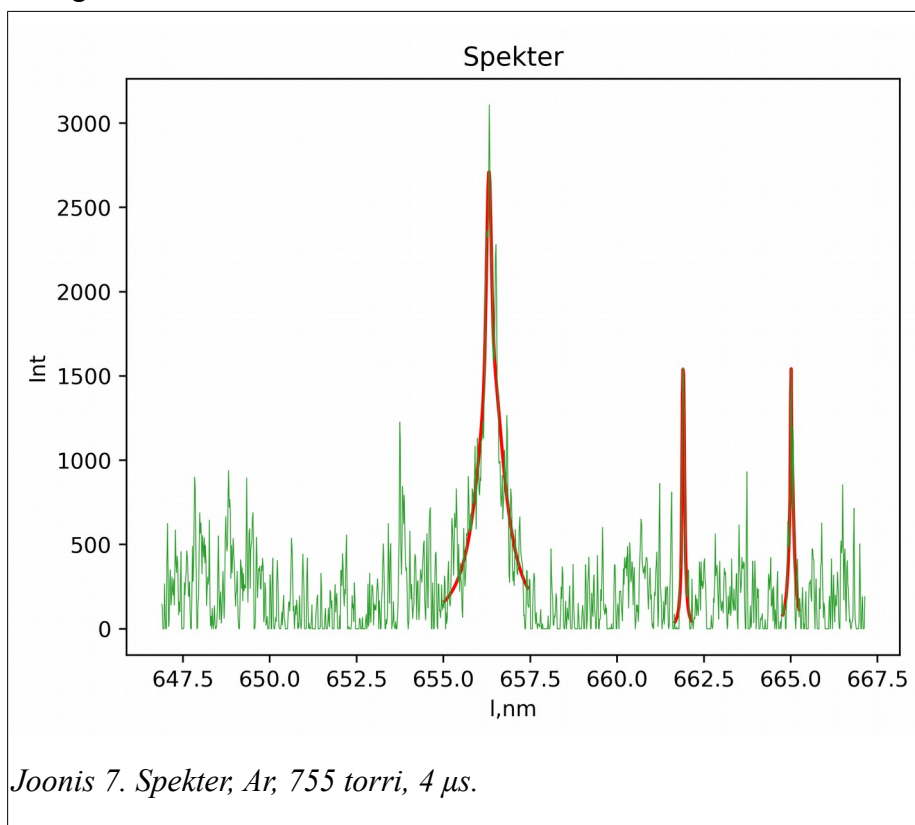
Spektrite puhul lõigati algul ära piirkonnad, kus kaamera ava tõttu signaali polnud. Järele jäi piirkond 646,9-667,1 nm. Selles piirkonnas olid huvipakkuvateks joonteks 656,27 nm vesiniku, ning 661,92 nm ja 665,04 nm molübdeeni jooned.

Kõigil spektritel määrati taustsignaali intensiivsus kõigi intensiivsuste mediaanväärtusest. Spektrist lahutati taustsignaal. Seejärel määrati müratase minimaalsest intensiivsusest ning nulliti kõik intensiivsused, mis olid negatiivsed.

Kuna vesiniku joone laius varieerus spektritel drastiliselt, oli vaja leida vesiniku joone algus- ja lõpp-punkt. Selleks töödeldi algul spekter müra silumiseks punktikauguse 51 ja 3. astme polünoomi Savitzky–Golay filtriga. Seejärel võeti teadaolev vesiniku joone asukoht ning otsiti sellest vasakul- ja paremalpool olevat intensiivsust, mis oleks pool müratasemest. Need asukohad määrati vesiniku joone alg- ja lõpp-punktiks. Molübdeeni joontele, mille laius oli peaaegu konstantne, määrati muutumatud piirpunktid.

Saadud vahemikus leiti joone maksimum ja tehti joone lähendus pseudo-Voigt kontuuriga (vt. joonis 7). Kui see lähendus ei õnnestunud, prooviti joont lähendada Gaussi ning siis Lorentzi kontuuriga. Lähenduskontuuriga arvutati joone intensiivsuse kontuuralune pindala ja joone täislaius poolkõrgusel. Analüüsimisel kasutati joonealust pindala joone maksimumi asemel, nagu artiklis [5, ptk 3.2] soovitati, sest joone maksimum oli kergemini müra mõjutatav. Sama protsessi rakendati nii vesiniku kui molübdeeni joontele.

Lõigatud vahemikus salvestati spektrid piltidena ning lisati ka joonte lähenduskontuurid (vt. joonis 7). Neilt piltidelt oli lihtne kontrollida, kas programm sai kontuuri lähendamisega hakkama või esines protsessis vigu.



Joonis 7. Spekter, Ar, 755 torri, 4  $\mu$ s.



### **2.2.2. Andmetöötluse 2. etapp**

Fotod ja spektrid olid jäädvustatud erinevatel tingimustel ning seetõttu polnud nende intensiivsused võrreldavad. Et saada võrreldavad andmed, tuli arvesse võtta ka asjaolu, et katseseeriatel oli erinev elektronkordistus, säriaeg, summeeritud laskude arv, eelvõimendus ja eraldiseisev parameeter “*exposure time*”. Tulemustena saadud intensiivsused jagati läbi kõigi eelnimetatud parameetritega, välja arvatud elektronkordistus. Elektronkordistuse parameetrist sõltuvale võimendusele vastas kasvav eksponent. Viimane sõltuvus on määratud eraldiseisva mõõtmisega. Intensiivsused jagati läbi sellest sõltuvusest saadud võimendusega.

Tulemuste analüüsimisel ja graafikute koostamisel kasutati 661,9 nm molübdeeni joont, kuna see oli intensiivsem ja püsis intensiivne kauem kui 665,0 nm joon.

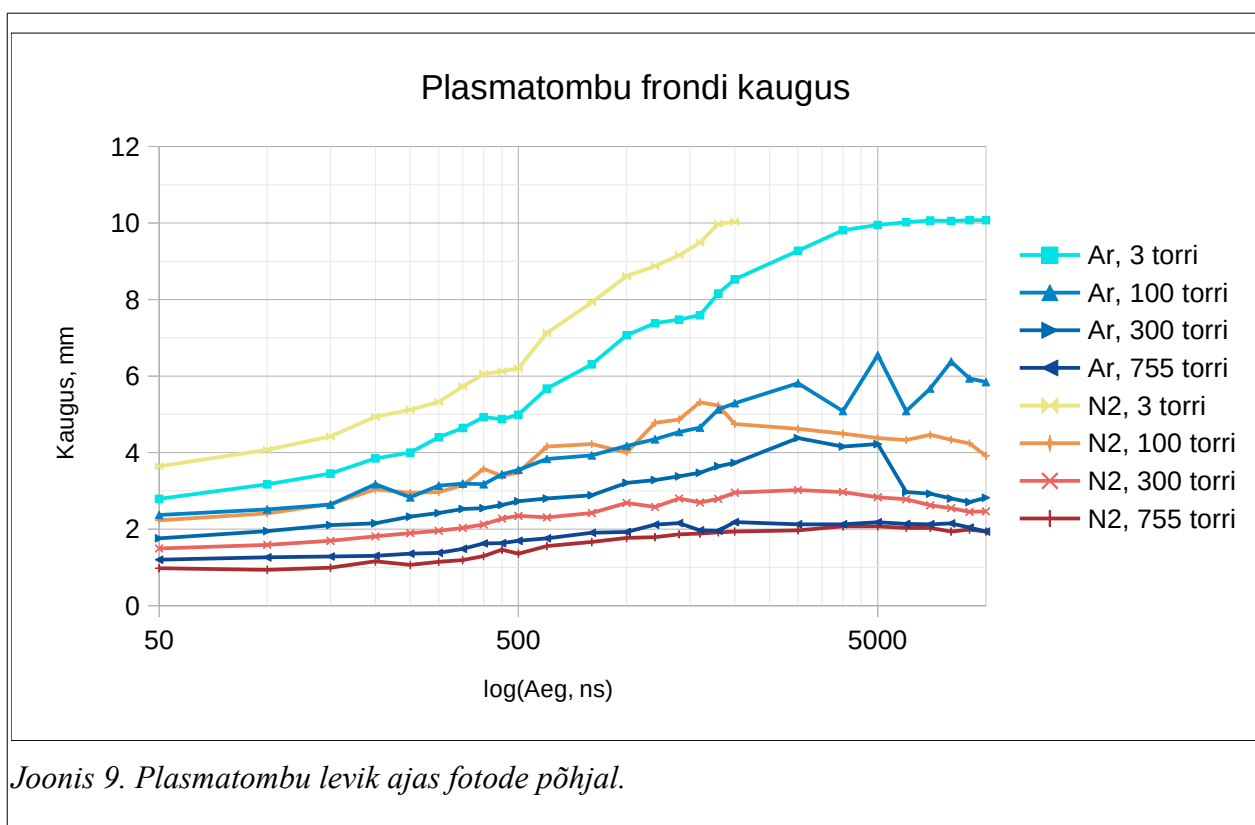
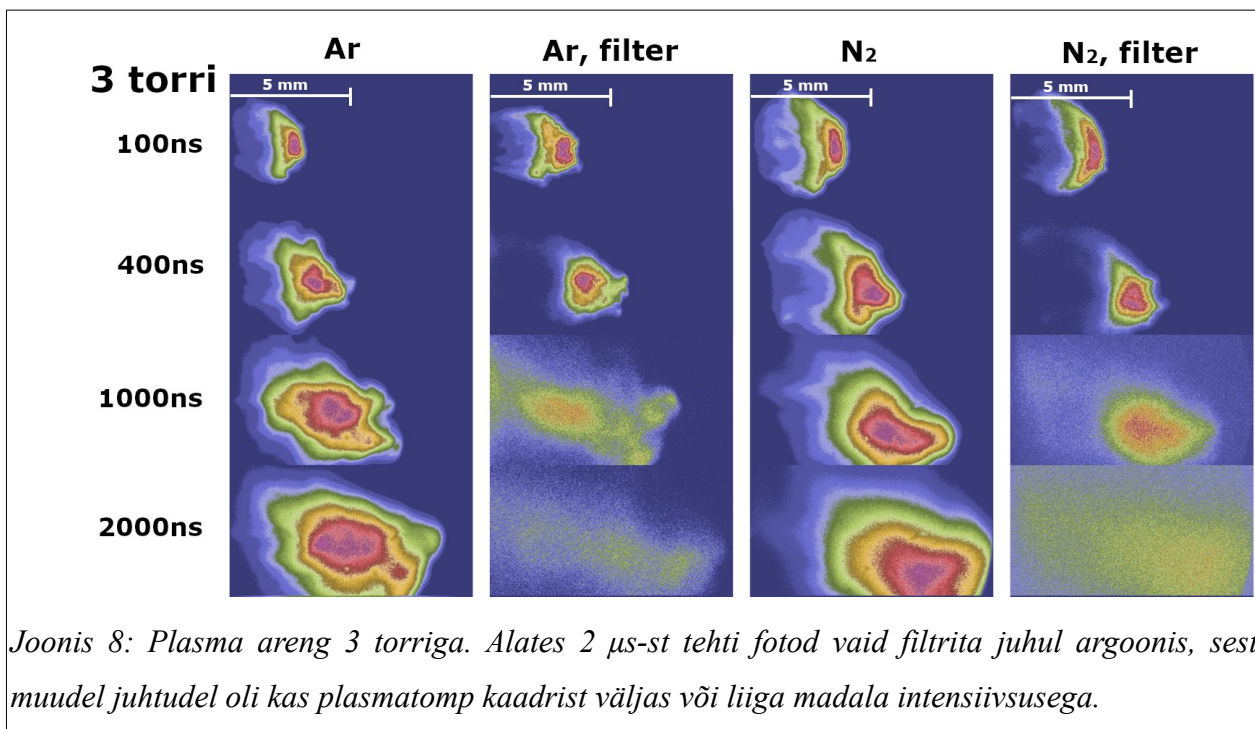
Selgus ka, et üsna paljud isegi silma järgi ilusad vesiniku jooned olid programmil jäänud mingil põhjusel kontuuriga sobitamata. Selleks, et rohkem andmepunkte oleks, tehti Spreadsheeti abil tabel, milles määrati käsitsi lainepikkuste vahemik, milles vesiniku joon visuaalselt asetses. Selle info järgi töötles tabel spektri sarnaselt Pythoni koodile, arvutas joonealuse pindala ja leidis täislaiuse poolkõrgusel. Kuna praktiliselt igas seerias oli vähemalt ühes spektris sobitamata jäänud vesiniku joon ning korraga kõigi seeria spektrite töötlemine ei võtnud palju rohkem vaeva kui üksiku spektri töötlemine, töödeldi selle tabelifailiga kõik seeriad käsitsi.

## **2.3. Tulemused**

### **2.3.1. Plasmatombu levimine**

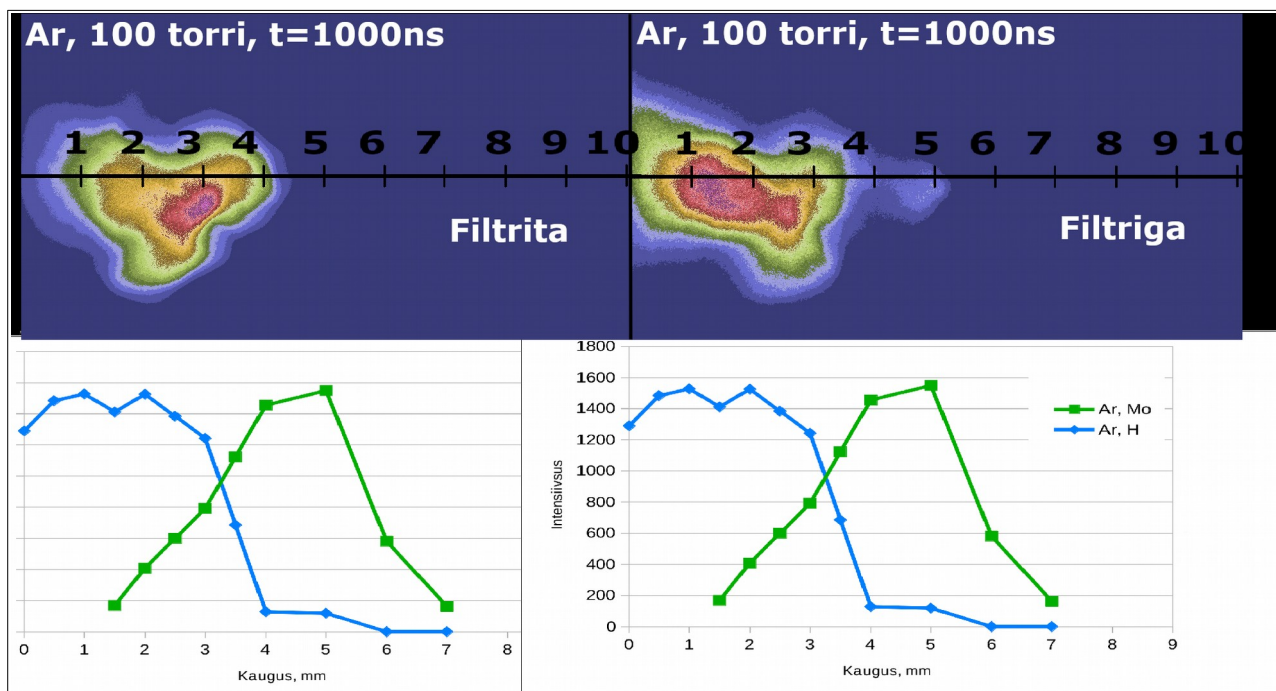
Fotod said tehtud viiteaegadel 50 ns kuni 10  $\mu$ s. Nende analüüsimisest selgus, et plasmatombu levimiskaugus on seda suurem, mida madalam on rõhk ja mida suurem on lasust möödunud aeg, kusjuures märklaud asus foto vasakul küljel (vt. joonis 8 ja lisa 3). Sama kinnitab ka fotode kvalitatiivne analüüsimine (vt. joonis 9).

Ilmneb, et plasmatomp tervikuna justkui kukuks allapoole. Efekt, mis seda põhjustab, võib olla tingitud asjaolust, kui katseobjekti pinnanormaal pole olnud kaamera horisontaaltelje suhtes paralleelne ning plasma on levinud pinnanormaali suunas. Lisaks varieerub plasmatombu kuju ja asukoht üksiklaskudega mõni millimeeter, kuid keskmistatud fotodel säilivad tombu iseärasused.



Madalatel rõhkudel levib plasmatomp kiiremini lämmastikus, kuid kõrgematel argoonis. Üleminek toimub 100 torri juures. Kindlal kaugusel jääb tomp pidama ning maksimaalne ulatus väheneb rõhu kasvades. Saadud kaugused on ajas piirile lähenevad eksponendid. See on kooskõlas artiklis [16] pakutud lööklaine levikuga. Osadel fotodel oli plasmatomp jõudnud kaugemale kui 10 mm ning oli seega kaadrist väljas. Nendel juhtudel ei saanud määrata tombu maksimaalset kaugust.

Filtriga ja filtrita jäädvustatud fotodelt tulid välja selged erinevused kiirgusjaotuse osas (vt. joonis 10). Filtrita tehtud fotol paiknes kiirgus märklauast kaugemal kui filtriga tehtud fotodel. Samas ei ole fotode põhjal võimalik kiirgusjaotust üheselt kokku viia vesiniku ja molübdeeni kiirgusega, sest võrreldes plasmatombu asukohta fotode ja spektrite põhjal, ilmnes, et asukohad ei langenud kokku.



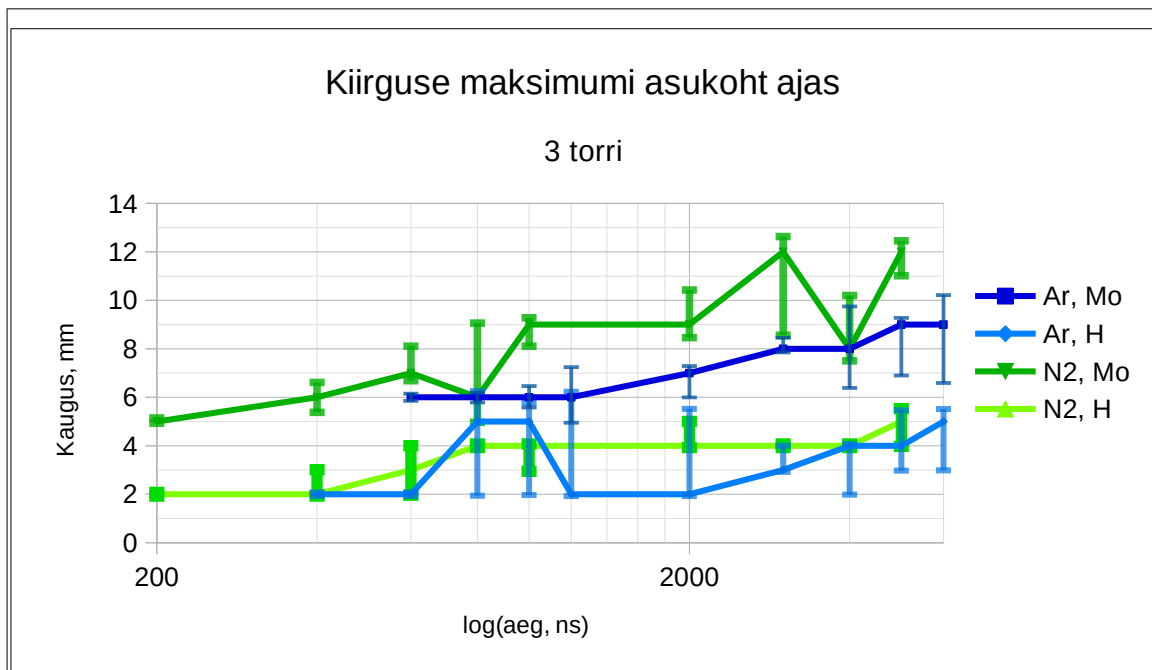
Joonis 10. Vesiniku ja molübdeeni kiirguste asukohta võrdlus fotol ja spektril. Siin joonisel on spektrid nihutatud valgusfiibri lahutusvõimest lähtuvalt 1 mm vasakule.

Filtriga registreeritud fotol oli plasmatomp nihkunud märklauast kaugemale kui vesiniku joone intensiivseim piirkond ning filtrita fotol märklauale lähemale kui molübdeeni joone intensiivseim piirkond. On võimalik, et vesinikul oli kogu plasma kiirguses piisavalt suur osakaal, et see mõjutas kogukiirguse asukohta fotol. Teisalt aga molübdeeni 661,9 nm joon ja taustkiirgus kumas läbi filtriga fotol (vt. lisa 2). Kuna tegu oli interferentsfiltriga, mõjutas tõenäoliselt fotosid ka spekter kaugematel lainepikkustel, kus interferentsfiltri läbilaskvus oli 1% suurusjärgus.

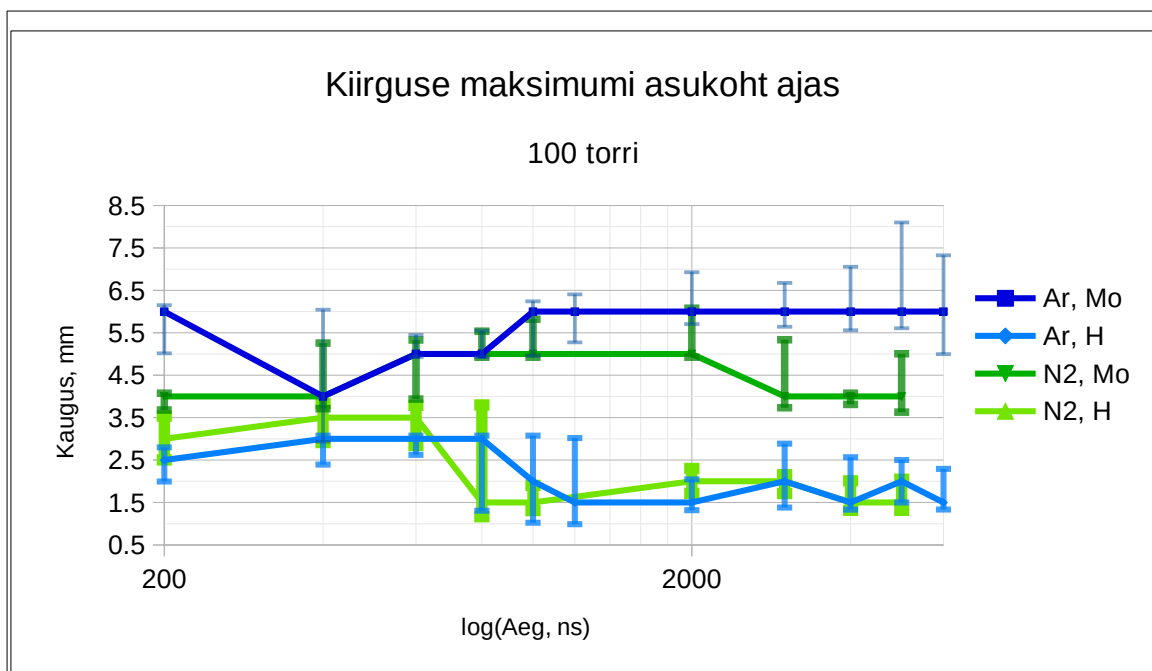
Palju fotode põhjal saadud tulemusi ja järeldusi tuli kõrvale jätta, kuna filtrita registreeritud fotode kiirgusi ei võinud molübdeeni kiirgusena käsitleda, filtriga registreeritud fotodel ei kajastanud plasmatombu asukoht ainult vesiniku kiirgust ning filtriga registreeritud fotode keskme asukoht ja frondi äär olid tegelikust asukohast nihkes.

Spektrite analüüsimisel selgus, et vesiniku ja molübdeeni kiirgus lähtus kõigil vaadeldud aegadel eri ruumipiirkondadest (vt. joonis 11, 12 ja 13). Molübdeeni ja vesiniku kiirgused kattuvad osaliselt (vt. lisa 5), kuid olenevalt gaasist vaid lühikestel viiteaegadel (3 torriga lämmastikus 200-800 ns ja

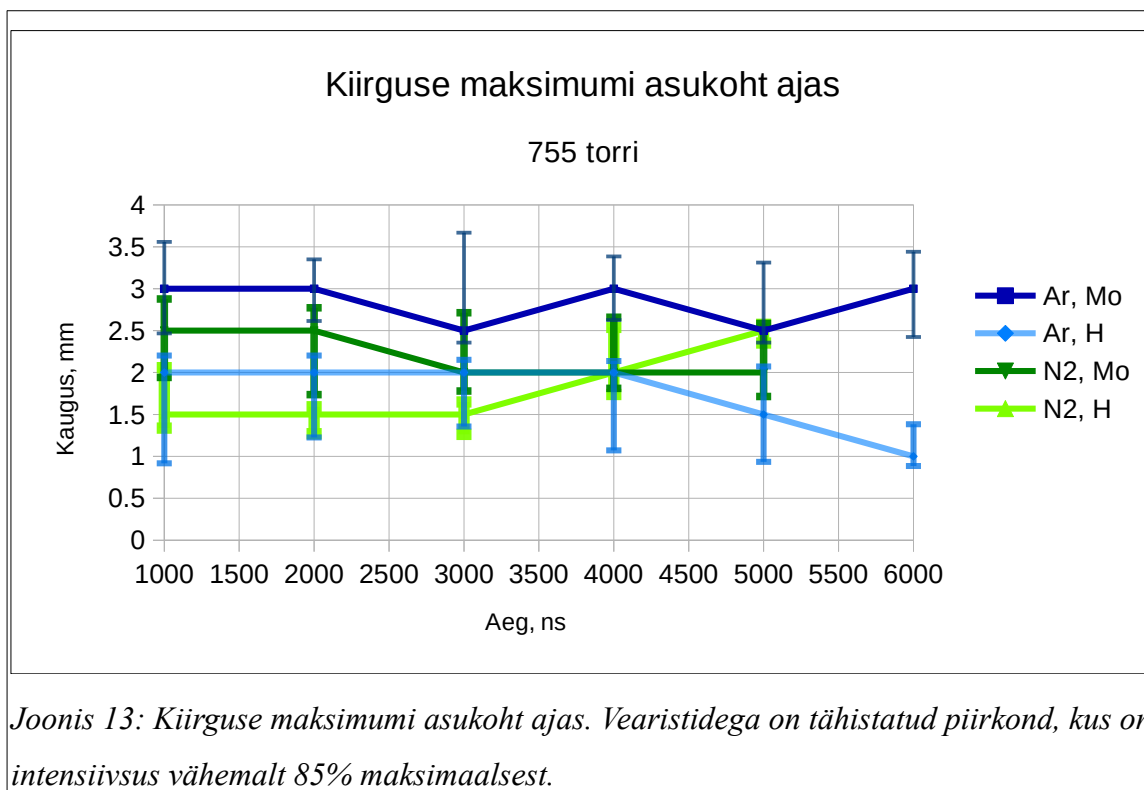
argoonis 600-1200 ns ning 100 torriga lämmastikus 200-400 ns) on nende intensiivsemad piirkonnad lähestikku.



Joonis 11: Kiirguse maksimumi asukoht ajas. Vearistidega on tähistatud piirkond, kus on intensiivsus vähemalt 85% maksimaalsest.



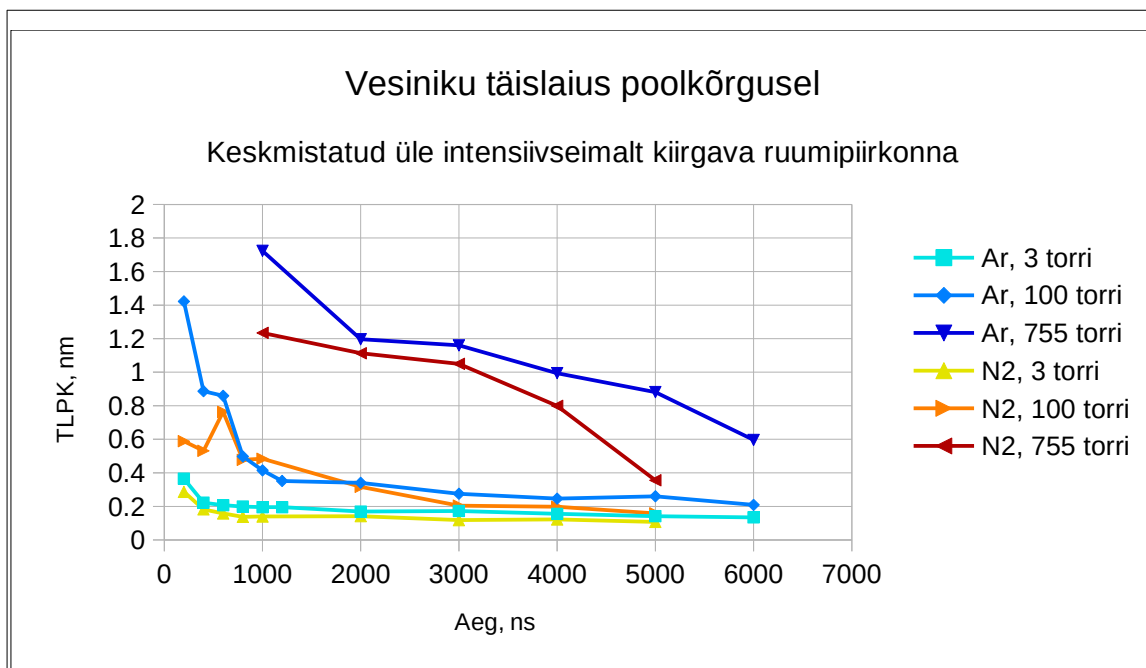
Joonis 12: Kiirguse maksimumi asukoht ajas spektrite põhjal. Vearistidega on tähistatud piirkond, kus on intensiivsus vähemalt 85% maksimaalsest.



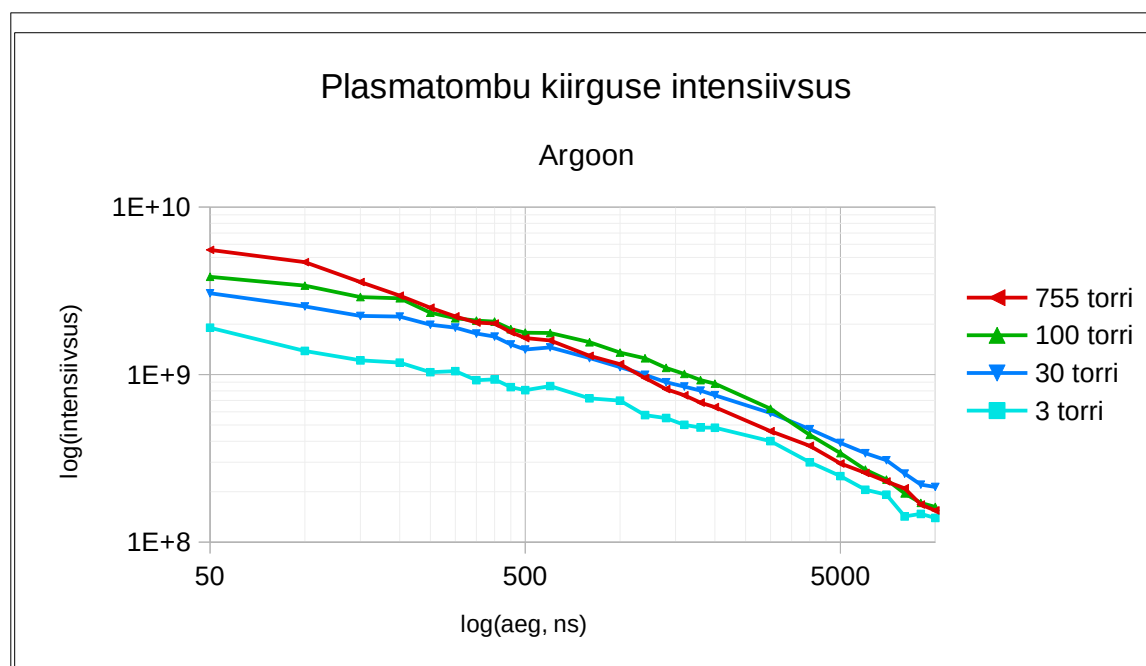
### 2.3.2. Joone laius ja plasmatombu kiirguse intensiivsus

Vesiniku joone laius, mis iseloomustab laengukandjate tihedust plasmas, sõltus eelkõige rõhust. Madalamal rõhul oli vesiniku joon vähem mürane ning täislaius poolkõrgusel oli väiksem kui kõrgel rõhul. Lisaks vähenes vesiniku joone laius ajaga (vt. joonis 14). Vesiniku laius poolkõrgusel oli lämmastikus madalam kui argoonis, hoolimata suurest taustkiirgusest. Molübdeeni joon oli läbi katsete ligikaudu 70 pm laiusega poolkõrgusel. See tähendab, et selle joone laius oli määratud spektromeetri aparaatfunktsiooniga.

Fotode põhjal määratud kogukiirguse intensiivsus langeb viiteaja kasvades kõigil rõhkudel (vt. joonis 15). Lühematel viiteaegadel on madalamatel rõhkudel madalam intensiivsus kui kõrgetel, kuid kõrgema rõhuga langeb intensiivsus kiiremini. Teatud viiteajast alates on madalamatel rõhkudel intensiivsus suurem kui kõrgetel rõhkudel. Lämmastikus käituvad intensiivsused sarnaselt, kuid on madalamad kui argoonis (vt. lisa 4).



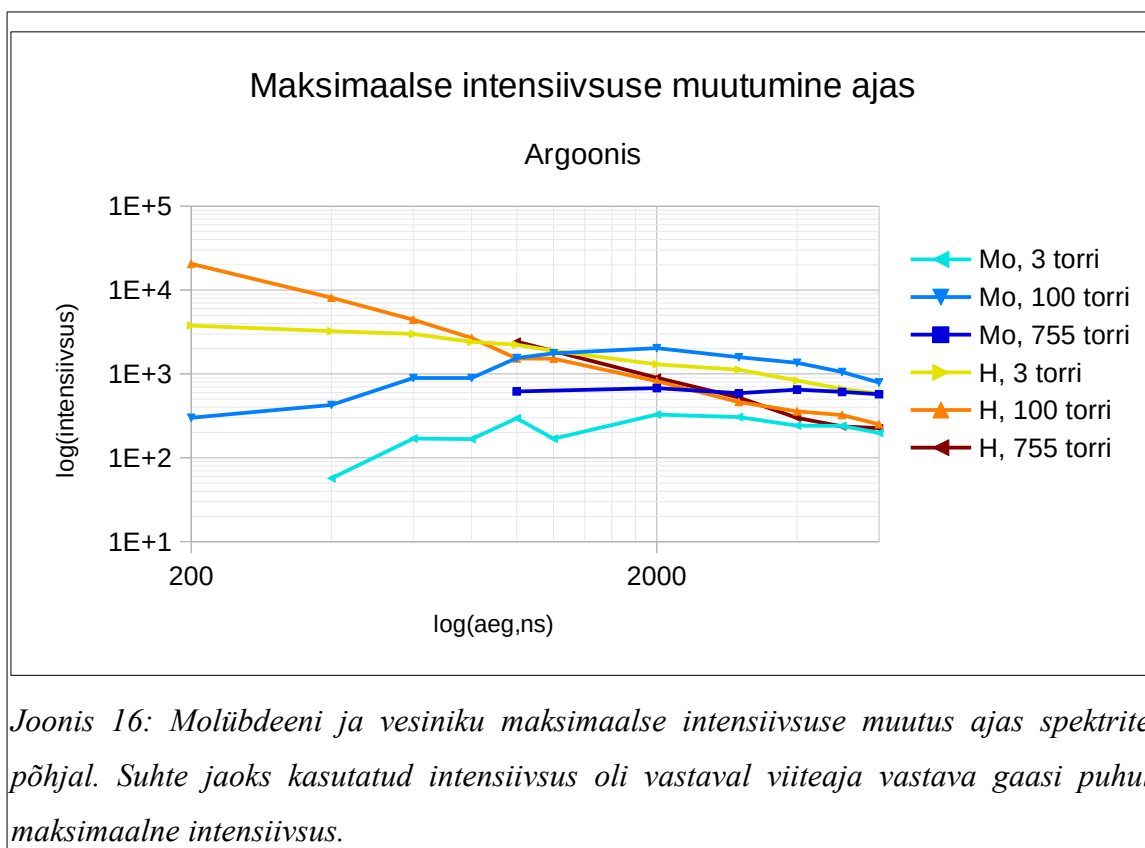
Joonis 14: Vesiniku täislaius poolkõrgusel spektrite põhjal. Punktid on saadud, keskmistades TLPK kaugustel, kus vesiniku kiirgus on vähemalt 60% maksimaalsest intensiivsusest.



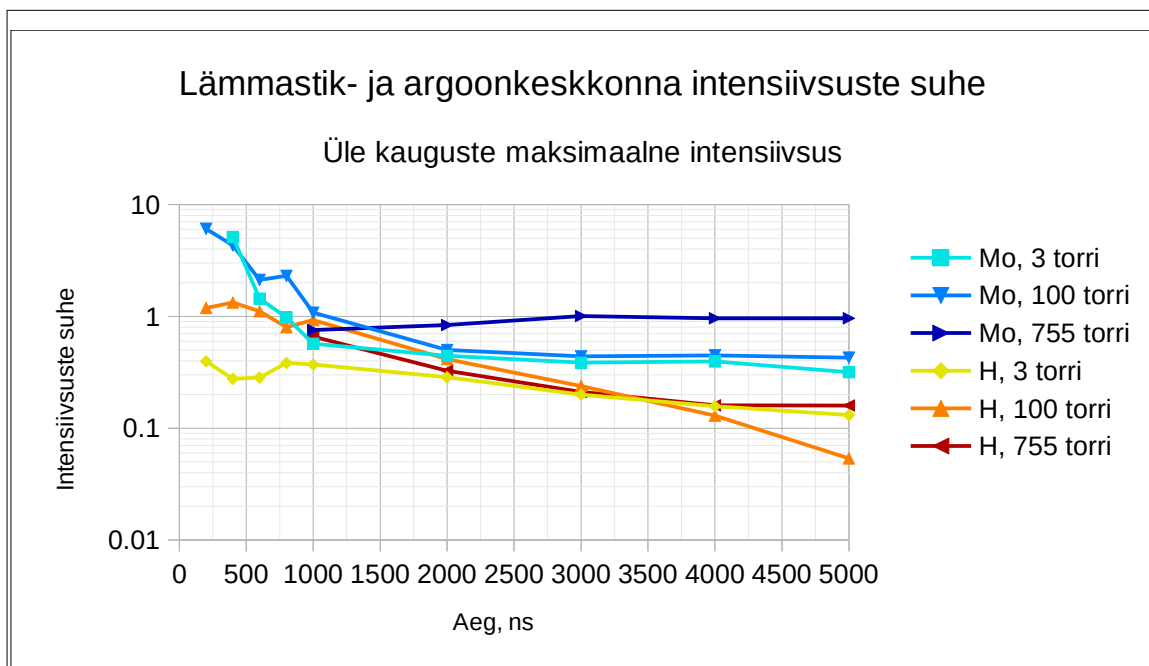
Joonis 15. Plasmatombu kogukiirguse intensiivsus muutus ajas fotode põhjal.

Spektrite põhjal analüüsiti ka molübdeeni 661,9 nm joone alusel vesiniku ja molübdeeni kiirguste intensiivsuste muutumist (vt. joonis 16 ja lisa 6). Võrreldes fotode järgi leitud kogu plasma kiirguse intensiivsust, erineb 661,9 nm joon selle poolest, et enne 1  $\mu$ s on 755 torri juures molübdeeni

kiirguse intensiivsus tõusev ning peale  $1\ \mu\text{s}$  on selle intensiivsus 755 torri juures erinevalt fotode juhust peaaegu konstantne. Vesiniku joon käitub sarnaselt fotode järgi leitud intensiivsusele.



Võrreldes kiirguse intensiivsusi lämmastikus ja argoonis, ilmneb, et viiteaegadel alates  $1\ \mu\text{s}$  on nii vesiniku kui molübdeeni kiirguse intensiivsus argoonis suurem kui lämmastikus (vt. joonis 17). Lämmastikus on madalatel viiteaegadel molübdeeni kiirguse intensiivsus kõrgem argooni kiirguse intensiivsusest 3 ja 100 torri juures ning vesiniku joone intensiivsus on kõrgem madalatel viiteaegadel 100 torri juures.



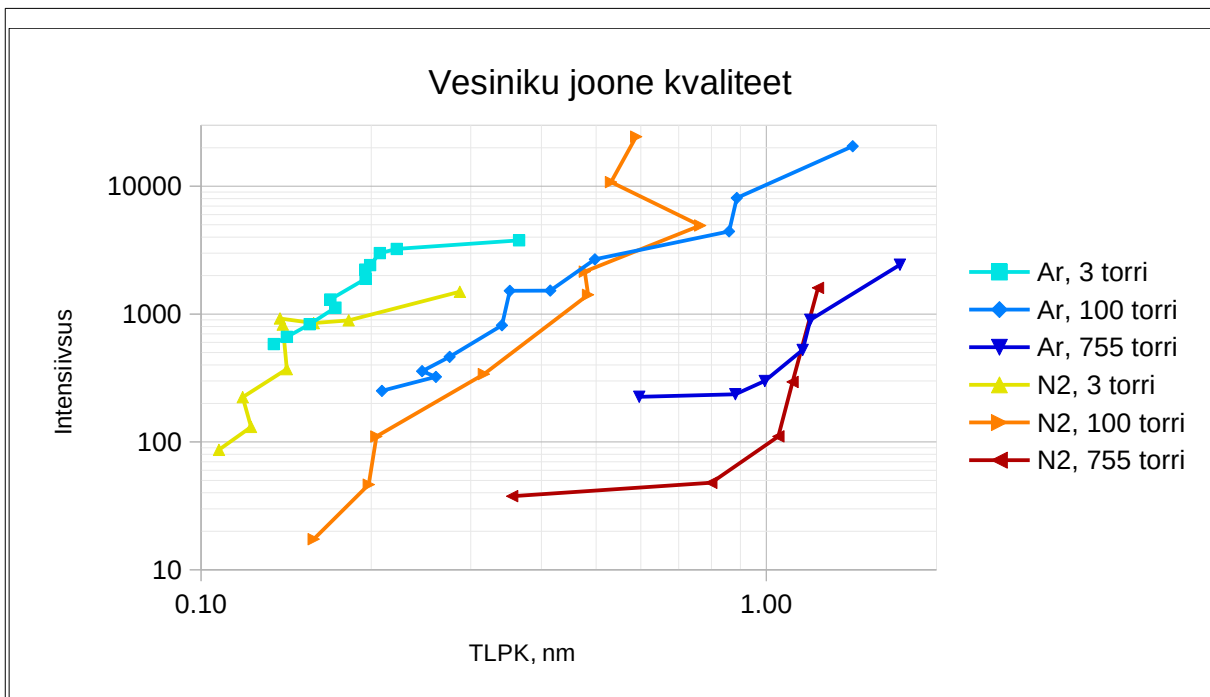
*Joonis 17: Plasma kiirguse intensiivsuse võrdlus lämmastikus ja argoonis spektrite põhjal. Suhte jaoks kasutatud intensiivsus oli vastaval viiteajal vastava gaasi puhul maksimaalne intensiivsus.*

Vesiniku joone kvaliteeti saab hinnata selle intensiivsuse ja täislaiuse poolkõrgusel abil. Mida kõrgem on intensiivsus ja mida väiksem joone laius, seda paremini on võimalik eristada vastavat joont taustsignaalist, müra ja teistest joontest. ITERi tingimustes on vaja eristada triitiumi ja deuteriumi, seega joone laius peab olema deuteriumi ja triitiumi joonte kaugusest – 0,1 nm-st väiksem.

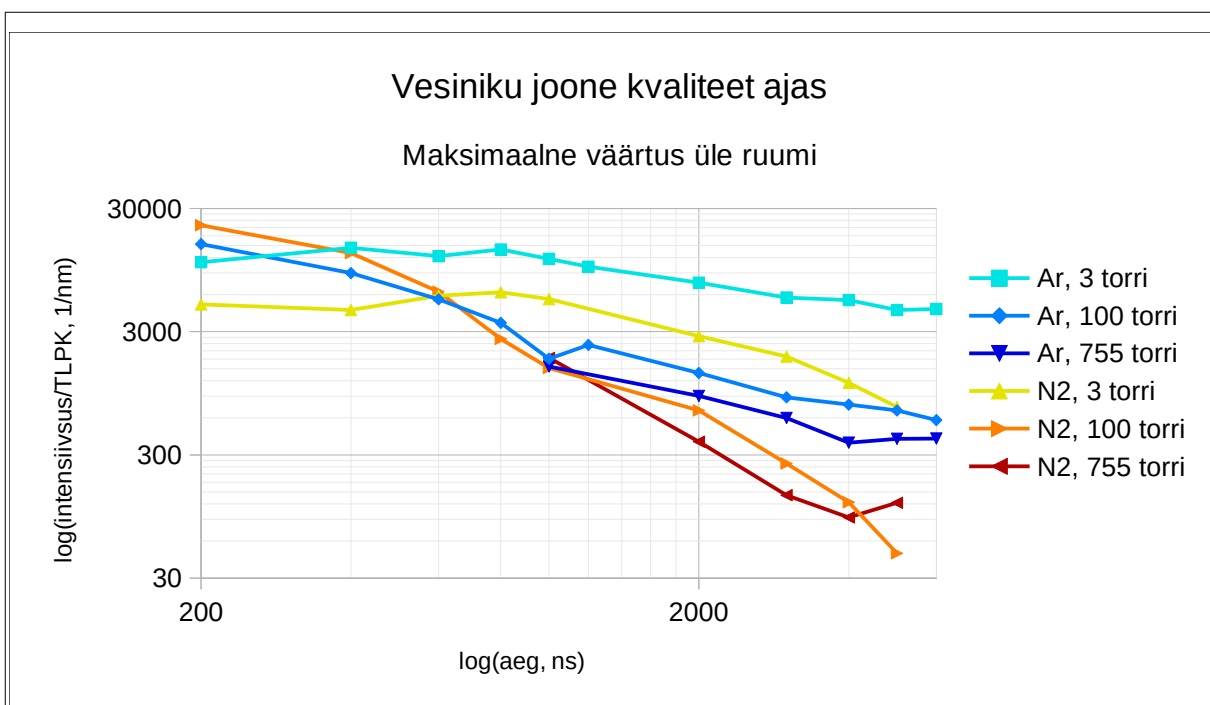
Kui peamine kriteerium on joone laius, siis uuritud parameetritel on kvaliteetseim vesiniku joon argoonis 3 torrisel rõhul (vt. joonis 18). Vesiniku joone laius on väike ka 3 torrisel rõhul lämmastikus, kuid lämmastikus on intensiivsus madalam kui argoonis. 100 torriga on vesiniku joon kõige intensiivsem, kuid joon on ka laiem. 755 torriga on joon kas väga lai või väga väikse intensiivsusega.

Alternatiivne joone kvaliteedi kujutamine on joone intensiivsuse ja laiuse jagatise ajaline kirjeldus (vt. joonis 19). Sel juhul on kvaliteetsem joon, millel on kõrgem intensiivsuse ja laiuse suhe. Intensiivsuse ja joone laiuse suhte põhjal oli kvaliteetseim vesiniku joon lämmastikus rõhul 100 torri väikestel viiteaegadel. Hea kvaliteet on joontel väikestel viiteaegadel kuni 100-torrise rõhuga. Joone kvaliteet kahaneb suuremate viiteaegade ja 600 ns-st suurematel viiteaegadel kahaneb joone kvaliteet ka rõhu kasvades. 600 ns-st suurematel viiteaegadel annab argoon iga rõhu jaoks parema tulemuse.





Joonis 18: Vesiniku joone kvaliteet spektrite põhjal. Joon on kvaliteetsem, kui see asub graafikul üleval vasakul nurgas. Punktid on saadud, keskmistades taustsignaalist tingitud vea vähendamiseks TLPK kaugustel, kus vesiniku kiirgus on vähemalt 60% maksimaalsest intensiivsusest. Intensiivsus võeti maksimaalne üle kauguste.



Joonis 19: Vesiniku joone kvaliteedi muutumine ajas spektrite põhjal. Joon on kvaliteetsem, kui see asub graafikul ülevalpool. Punktid on saadud, võttes maksimaalse jagatise üle kauguste.

## Kokkuvõte

Fotod andsid hea ülevaate üldisest plasma levikust ja kujust ning spektrite abil oli võimalik eristada vesiniku ja molübdeeni kiirguse jaotust plasmatombus. Seetõttu toetasid meetodid üksteist. Antud töö raames polnud võimalik fotode abil vesiniku käitumist üheselt määrata, kuid sellegipoolest sai kirjeldada plasmatombu kui terviku levikut ning fotode jäädvustamise meetodil on potentsiaali plasmatombu kui terviku kirjeldamisel.

Plasma iseloomust tingituna oli enamikul katsetest taustsignaal (vt. lisa 7) arvestatava intensiivsusega. Seetõttu oli andmete analüüsimine raskendatud ning üksikutes tulemustes on potentsiaalselt suur viga. Sellegipoolest on võimalik jälgida trende.

Plasmatomp saavutab teatud ajahetkel maksimaalse kauguse, millest edasi ta ei levi. See kaugus sõltub rõhust järgnevalt: mida kõrgem on rõhk, seda lähemal märklauale on kõige kaugem koht, kuhu plasmatomp levib. Selle tähelepaneku saab teha rõhkudel alates 30 torrilt, sest 3 ja 10 torri juures väljus plasmatomp kaadrist, kuid plasmatombu aeglustumist oli ka 10 torri juures märgata. Plasmatombu levimiskiirus on suurem madalal rõhul. Vaadeldud rõhkudel oli plasmatombu maksimaalne levikukaugus lämmastikus väiksem kui argoonis. Plasmatombu levik sarnaneb artiklis[16] väljatoodud lööklaine levikuga õhutakistuse mudeli järgi.

Fotode ja spektrite analüüsimisest selgus, et molübdeeni ja vesiniku kiirgus lähtus plasmatombu eri piirkondadest, mistõttu on vähemalt osaliselt üks kalibratsioonivaba LIBSi eeldustest rikutud.

Sõltumata rõhust ja gaasikeskkonnast, olid molübdeeni ja vesiniku kiirguste lähteallikad pikematel viiteaegadel ruumiliselt rohkem eraldatud. Suurimad erinevused tulid välja 3 torri korral, kus kiirguste lähtekohad oli eraldatud *ca* 5 mm-ga. 755 torri korral olid plasmatombu mõõtmel väikesed ja seetõttu lähtusid molübdeeni ja vesiniku kiirgused üksteisele suhteliselt lähedalt – *ca* 1 mm kauguselt. Võrreldes argooniga olid lämmastikus kiirguste lähtekohad 3 torri juures kaugemal ja 100 torri juures lähemal.

Molübdeeni kiirguse intensiivsus oli suurim 100 torri juures, sõltumata gaasikeskkonnast. Vesiniku kiirguse intensiivsus oli suurem lämmastikus enne 1800 ns kõrgemal rõhul ning peale 1800 ns väiksemal rõhul. Argoonis toimus sama üleminek 800-1200 ns viiteaegadel. Kogu plasma kiirguse intensiivsus kahanes kõrgematel rõhkudel kiiremini kui madalatel.

Vesiniku joone kvaliteet on üldiselt parem argoonis. Argooni eeliseks on asjaolu, et signaal-taustsignaal suhe oli suurem kui lämmastikuga. Samas lämmastiku eeliseks on asjaolu, et vesiniku joone täislaius poolkõrgusel on väiksem, eriti 755 torri juures.

Väga hea kvaliteet on vesiniku joonel argoonis 3 torrisel rõhul, kui joone laius on väike ning intensiivsus suur. 100 torrisel rõhul on joone laius suurem, kuid teatud tingimustes on ka intensiivsus suurem. 755 torri juures on joone kvaliteet kõige kehvem – vesiniku joon on ka väga lai või väga väikese intensiivsusega. Joone kvaliteet langeb aja möödudes.

Uuritud rõhkudel polnud joone laius alla 0,1 nm, seega tritiumi ja deuteriumi poleks võimalik lahutada, kuid vesiniku ja deuteriumi lahutamine on võimalik, kuna viimased asuvad üksteisest 0,2 nm kaugusel. Lisaks viiteaegadel kuni 600 ns puudus 661,9 nm molübdeeni joon, kuid fotodelt arvatud plasmatombu koguintensiivsuse järgi võis molübdeen kiirata teistel lainepikkustel.

Et oleks võimalikult palju täidetud kalibratsioonivaba LIBSi eeldus, et molübdeeni ja vesiniku kiirgus lähtub samast kohast ning et vesiniku joont oleks kerge eristada taustsignaalist, on soovitatav uurida lühikesi viiteaegu madalatel rõhkudel. Madal rõhk on tarvilik madala taustsignaali ja väikse vesiniku joone laiuse jaoks, kuid madalal rõhul pole lühikestel viiteaegadel enam 661,9 nm molübdeeni joont, mida saaks kasutada kalibratsioonivaba LIBSiga vesiniku koguse hindamiseks. Samas tõenäoliselt molübdeeni põhijooned on intensiivsed ning nende järgi saab vajaliku informatsiooni kätte. Pole ka välistatud, et madalamatel rõhkudel kui 3 torri on võimalik taustsignaali ja vesiniku joone laiust veel enam vähendada, muutes ka deuteriumi ja tritiumi eristamise võimalikuks. Joonte eristamiseks taustsignaalist on argoon lämmastikust parem, kuid teatud olukordades, kui joone laiust on vaja vähendada, sobib selleks lämmastik.

# Summary

## Spatial and temporal dynamics of laser-induced plasma in argon and nitrogen environment

International Thermonuclear Experimental Reactor (ITER) is being built as the largest fusion reactor experiment. Since radioactive tritium (T) needs to be monitored in the reactor wall, different methods are considered, one of which is laser-induced breakdown spectroscopy (LIBS). However, it is uncertain in which conditions the monitoring takes place.

The aim of this work was to investigate laser-induced molybdenum (Mo) and hydrogen (H) plasma plume and its development in space in order to investigate whether the calibration free LIBS can be used for the monitoring of hydrogen isotopes. The radiation of the plasma plume was characterized by ICCD camera photos and spectral line intensities of Mo and H together with H Balmer  $\alpha$  line's full length at half maximum (FWHM). Moreover, experiments were done both in argon and nitrogen environments using different pressures from 3 to 755 Torr.

The radiation of Mo and H originates from spatially different regions. Because of plasma characteristics the results had large background signal due to which separate data points were unreliable. However trends suggest that the radiation sources were closer in both 3 and 100 Torr pressures and at lower delay times up to 1200 and 600 ns, respectively. At longer delay times the sources were at the distance of around 4 mm. At 755 Torr the plasma plume was smaller and therefore the sources were relatively close – 1mm at worst.

The use of argon gives substantially better results as the intensities are higher in almost all conditions. At 3 Torr the H line is around 0,15 nm wide allowing differentiation of H and T. However if smaller FWHM is needed nitrogen can be used since FWHM in nitrogen tended to be a bit smaller than in argon.

In conclusion calibration free LIBS can be used since in some cases the radiation sources were nearby. The best results can be acquired by using argon and 3 Torr below delay times of 1200 ns.

# Kasutatud kirjandus

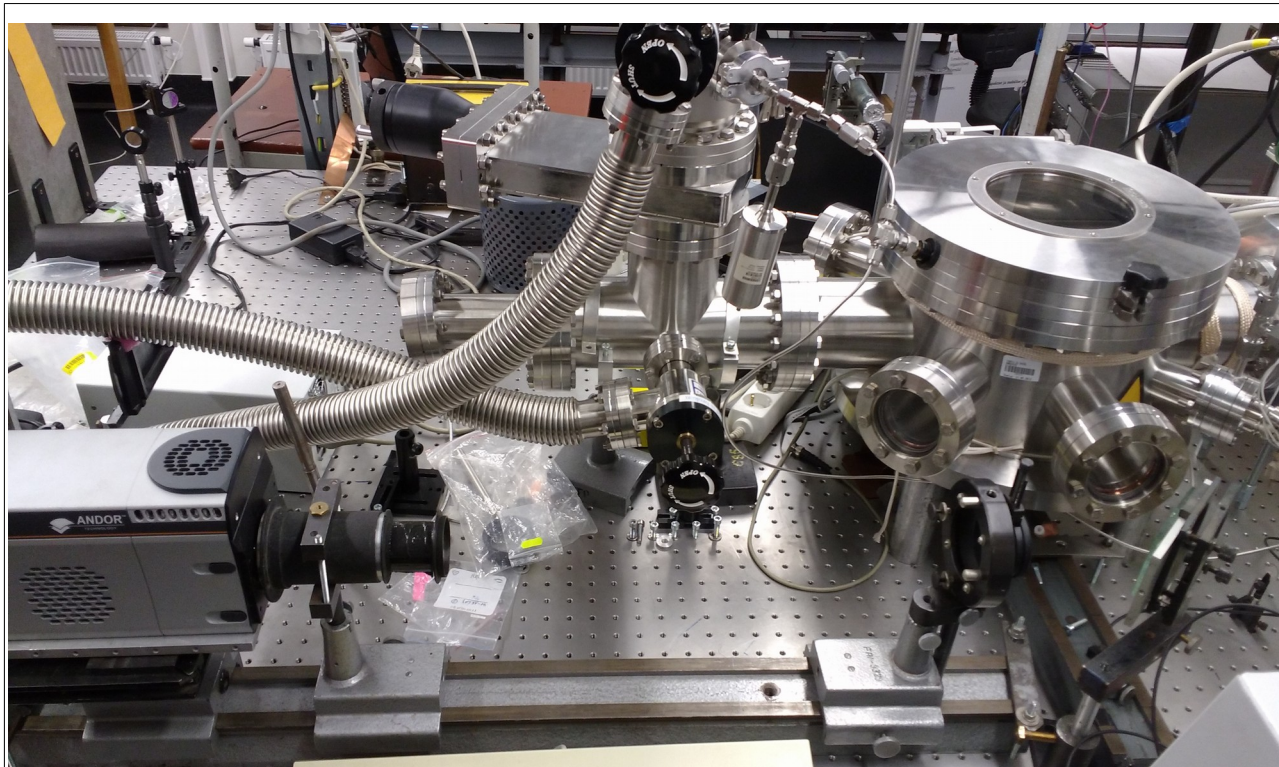
- [1] ITER Organization, <https://www.iter.org/proj/inafewlines>, (© 2019, kasutatud: 30.05.2019)
- [2] Roth J., Tsitrone E., Loarer T., Philipps V., Brezinsek S., Loarte A. et al, “Tritium inventory in ITER plasma-facing materials and tritium removal procedures”, IOP Publishing, Plasma Phys. Control. Fusion, 50, 103001, (2008).
- [3] Philipps V., Malaquias A., Hakola A., Karhunen J., Maddaluno G. et al, “Development of laser-based techniques for in situ characterization of the first wall in ITER and future fusion devices”, IOP Publishing, Nucl. Fusion, 53, 093002, (2013)
- [4] Almagia S., Caneve L., Colao F., Fantoni R., Maddaluno G., “Remote-LIBS characterization of ITER-like plasma facing materials“, Journal of Nuclear Materials, 421, 73–79, (2012)
- [5] Tognoni E., Cristoforetti G., Legnaioli S., Palleschi V., “Calibration-Free Laser-Induced Breakdown Spectroscopy: State of the art”, Spectrochimica Acta Part B, 65, 1–14 (2010)
- [6] Mercadier L., Hermann J., Grisolia C., Semerok A., “Plume segregation observed in hydrogen and deuterium containing plasmas produced by laser ablation of carbon fiber tiles from a fusion reactor”, Spectrochimica Acta Part B, 65, 715–720, (2010)
- [7] Cremers D. A., Radziemski L. J., Handbook of Laser-Induced Breakdown Spectroscopy, (John Wiley & Sons Ltd, Chichester, 2006), ptk 2.1
- [8] Noll R., Laser-Induced Breakdown Spectroscopy: Fundamentals and Application, (Springer-Verlag Berlin, Heidelberg, 2012), lk 9
- [9] ITER Organization, <https://www.iter.org/mach/divertor>, (© 2019, kasutatud: 30.05.2019)
- [10] Winefordner J. D., Gornushkin I. B., Correll T., Gibb E., Smith B. W., Omenetto N., “Comparing several atomic spectrometric methods to the super stars: special emphasis on laser induced breakdown spectrometry, LIBS, a future super star”, Journal of Analytical Atomic Spectrometry, 19, 1061-1083, (2004)
- [11] Hahn D. W., Omenetto N., “Laser-Induced Breakdown Spectroscopy (LIBS), Part I: Review of Basic Diagnostics and Plasma– Particle Interactions: Still-Challenging Issues

Within the Analytical Plasma Community”, Applied Spectroscopy, Focal Point 335A-366A, (2010)

- [12] Kortspärn M., “Spektrijoonte omaneeldumine volframi laserindutseeritud plasmas”, Tartu Ülikool, bakalaureusetöö, (2016)
- [13] Farid N., Wang H., Li C., Wu X., Oderji H. Y., Ding H., Luo G.-N. et al, “Effect of background gases at reduced pressures on the laser treated surface morphology, spectral emission and characteristics parameters of laser produced Mo plasmas “, Journal of Nuclear Materials, 438, 183–189, (2013)
- [14] Maddaluno G., Almaviva S., Caneve L., Colao F., Lazic V. et al, “Detection by LIBS of the deuterium retained in the FTU toroidal limiter”, Nuclear Materials and Energy, 18, 208–211,(2019)
- [15] Paris P., Butikova, J., Laan, M., Aints, M., Hakola, A., Piip, K., Tufail, I. Veis, P., “Detection of deuterium retention by LIBS at different background pressures”, IOP Publishing, (2017)
- [16] Harilal, S. S., Miloshevsky G. V., Diwakar P. K., LaHayeN. L., Hassanein A., “Experimental and computational study of complex shockwave dynamics in laser ablation plumes in argon atmosphere”, Physics of Plasmas, 19, 083504, (2012)

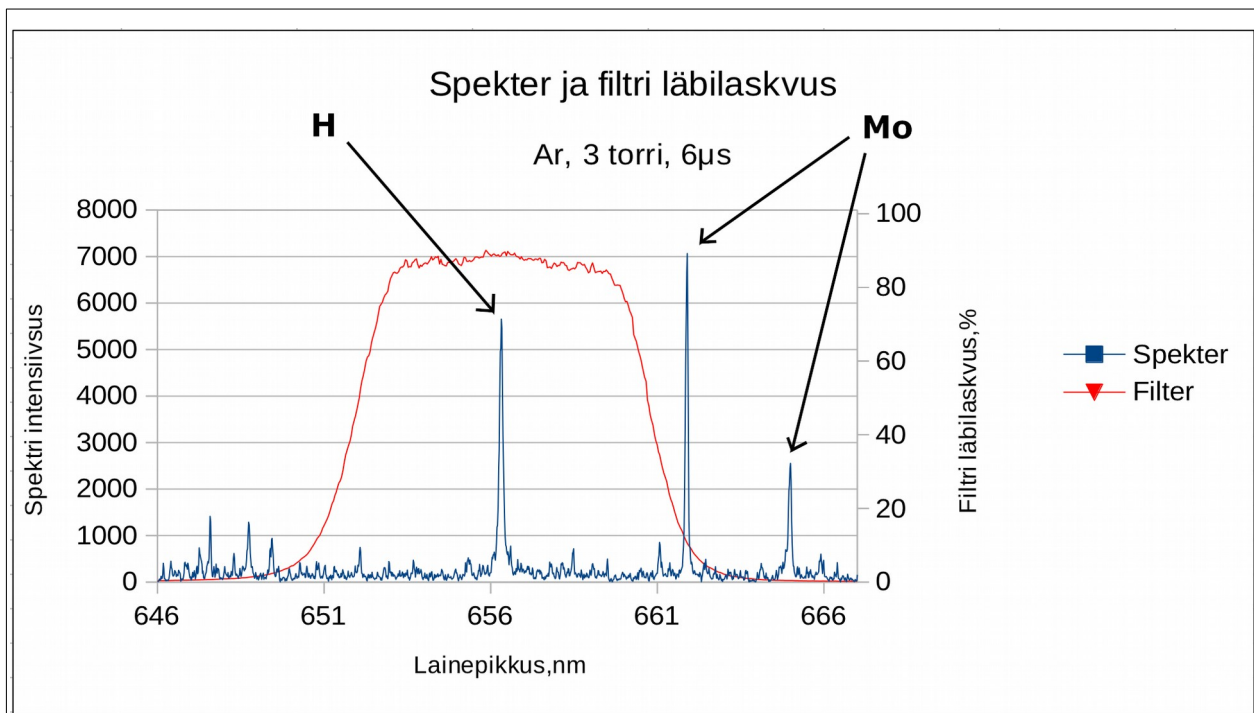
# Lisad

## Lisa 1. Katsekamber fotode salvestamisel



*Joonis 20: Foto: Indrek Jõgi. Fotode salvestamiseks seatud eksperiment.*

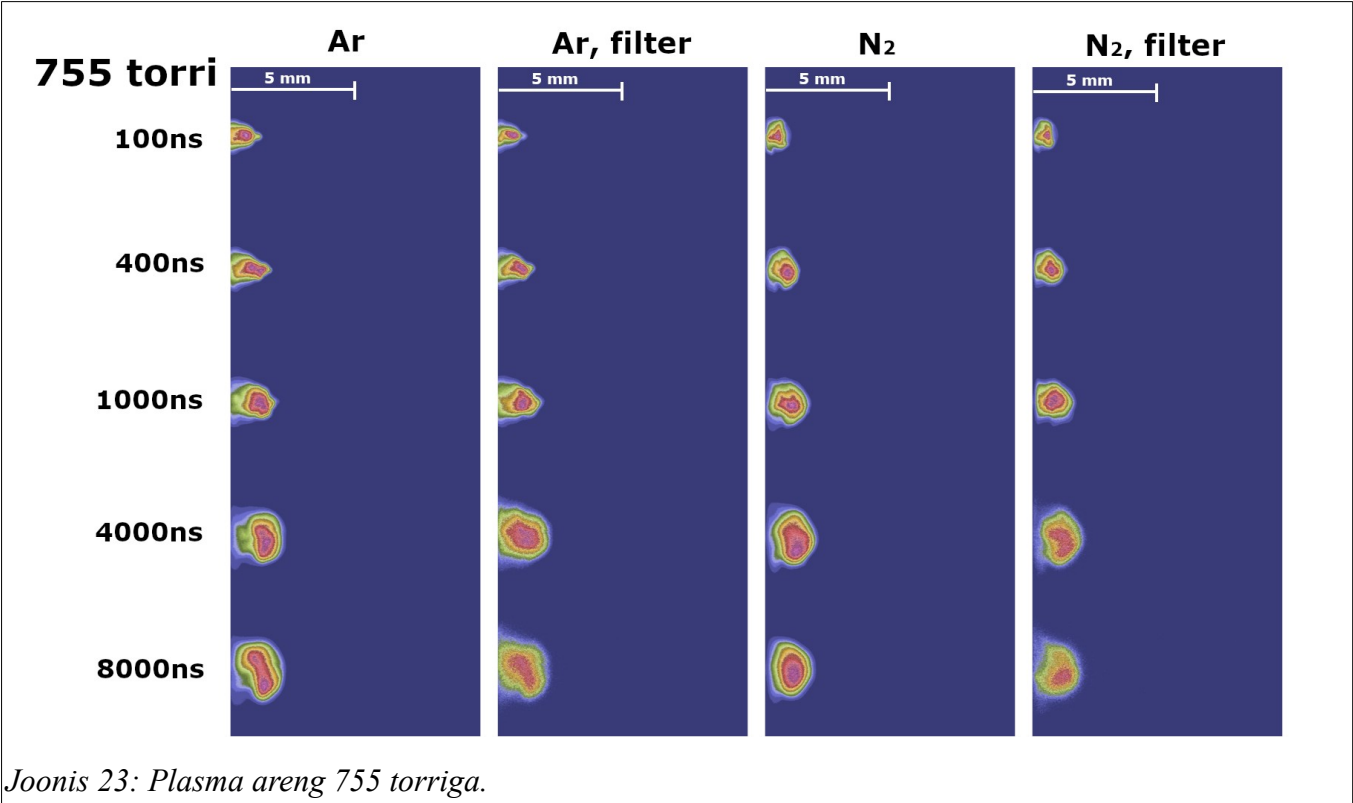
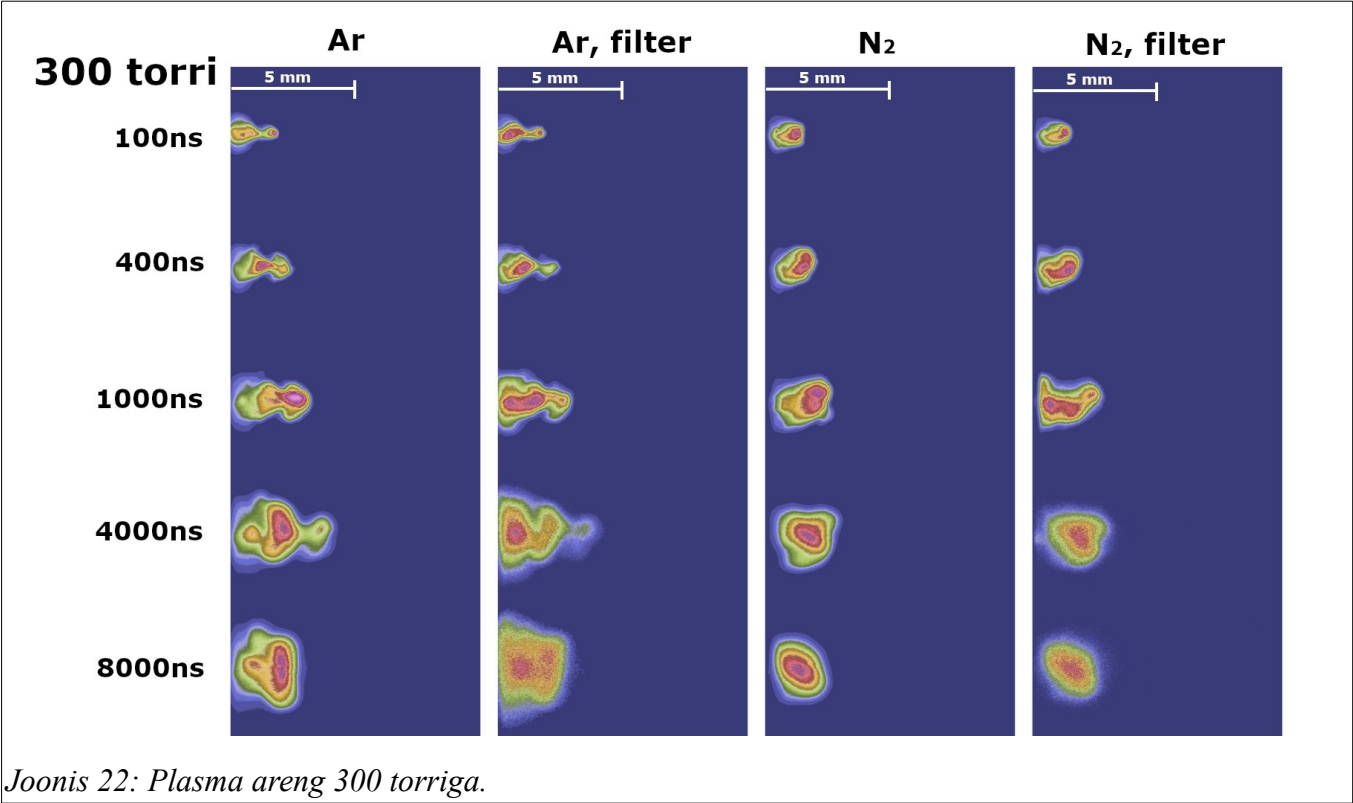
## Lisa 2. Filtri läbilaskvuspiirkond



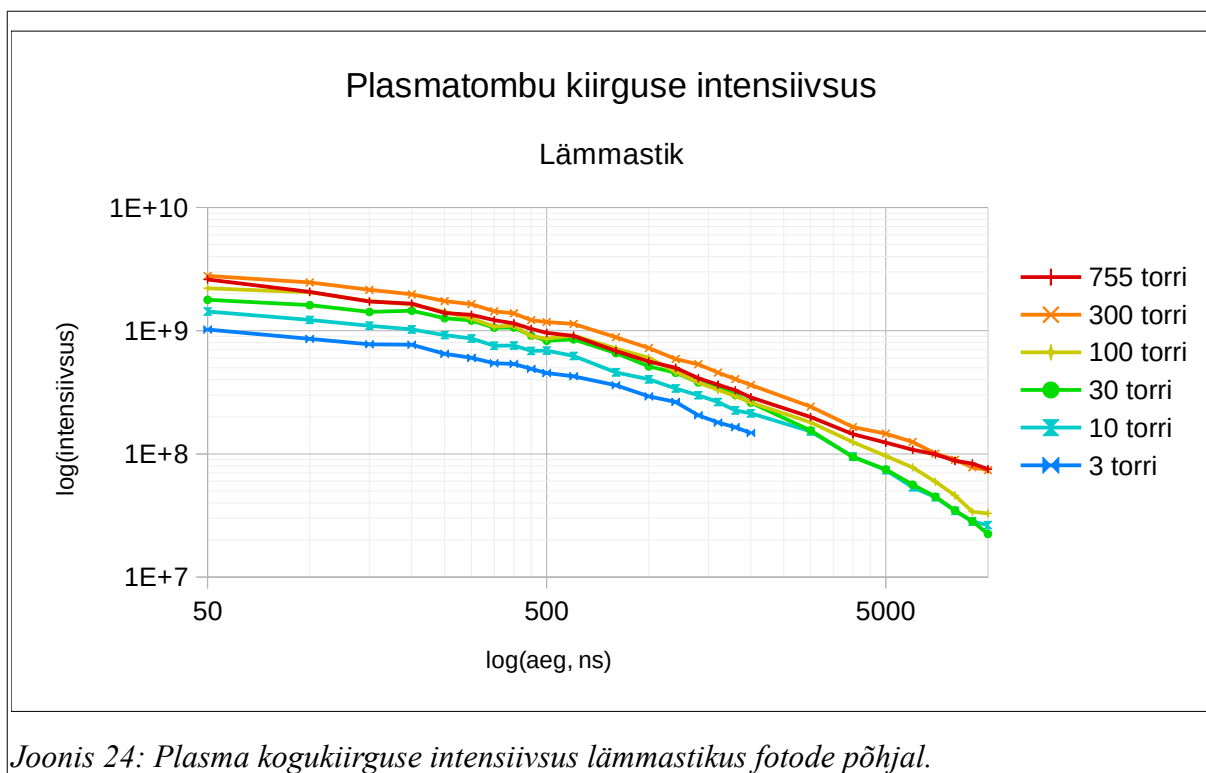
Joonis 21: Fotode juures kasutatud filtri läbilaskvuspiirkond ja huvipakkuvad jooned.



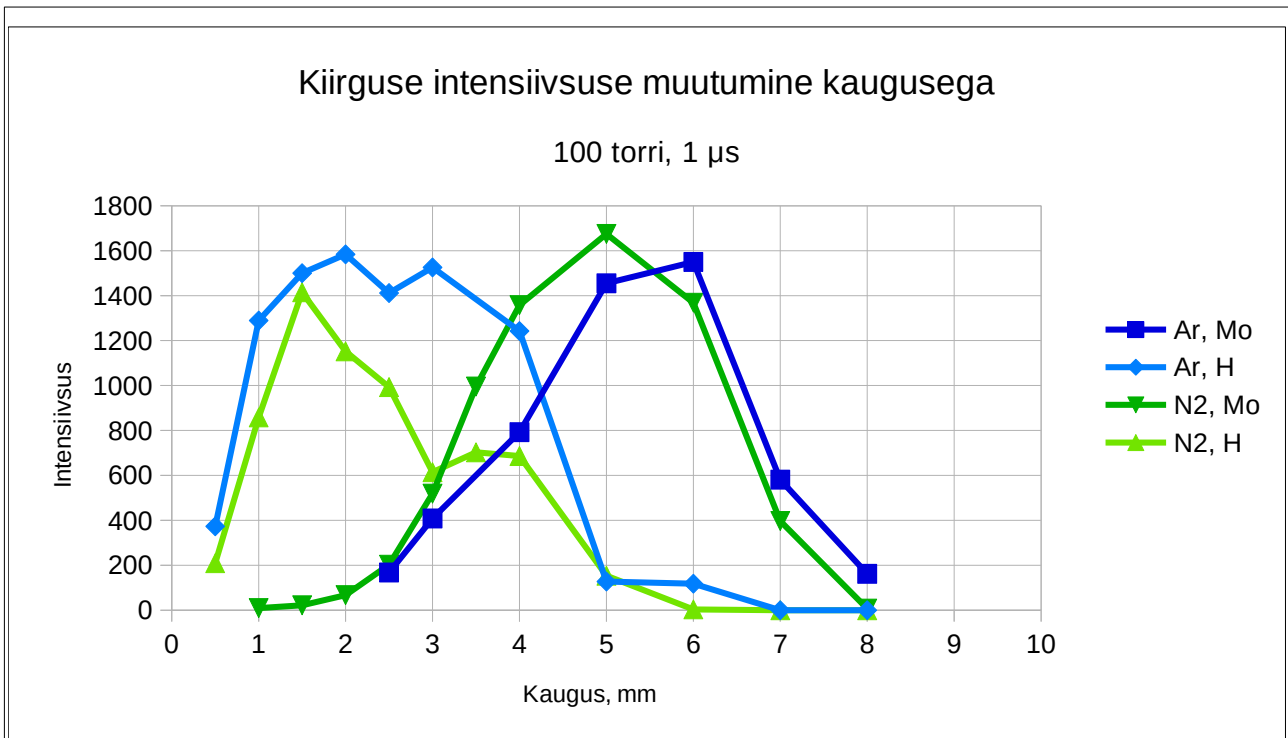
**Lisa 3. Plasma areng 300 ja 755 torriga**



## Lisa 4. Plasmatombu kiirguse intensiivsus lämmastikus

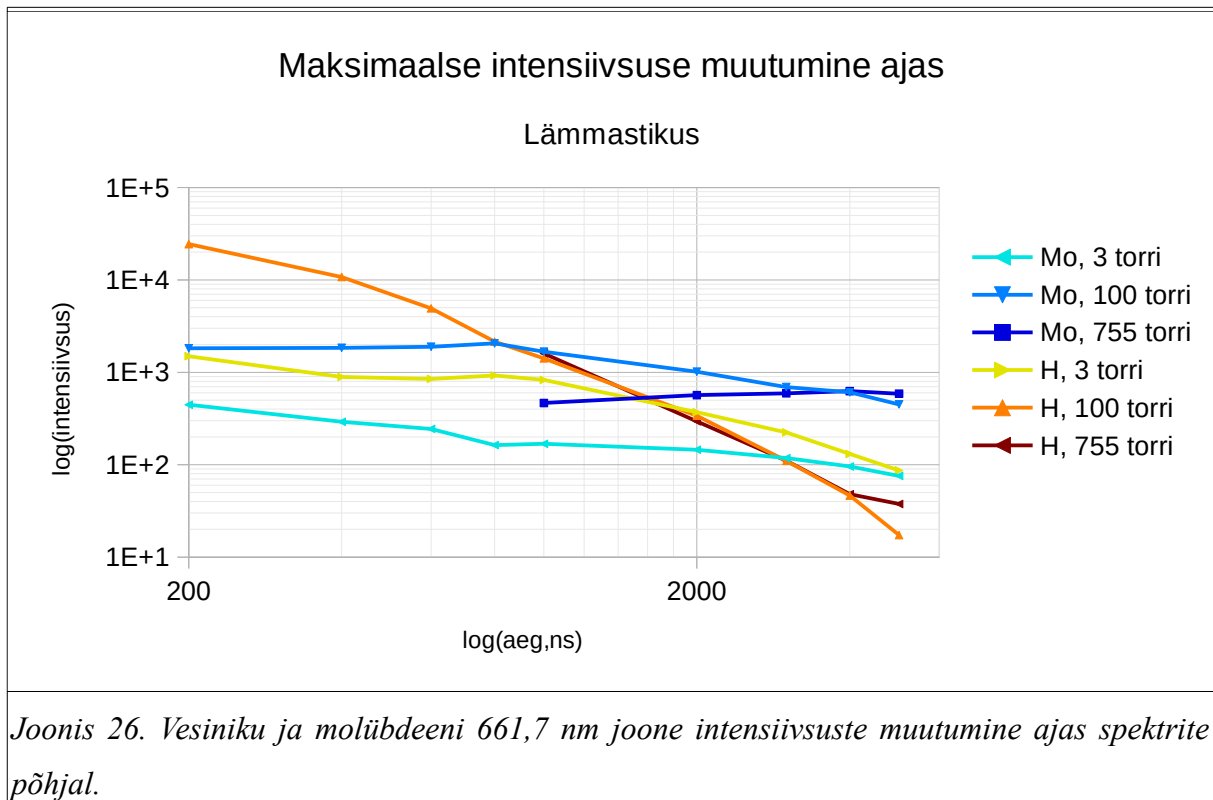


## Lisa 5. Näide kiirguse intensiivsuse muutumisest kaugusega

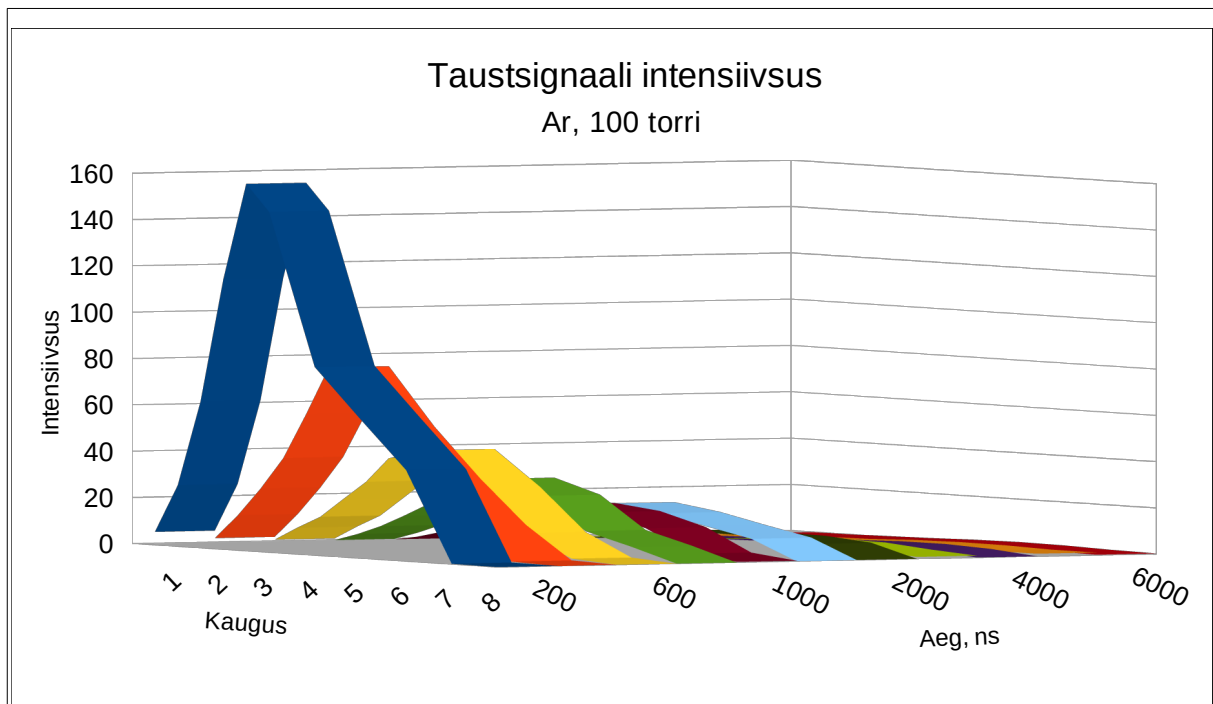


Joonis 25: Näide kiirguse intensiivsuse muutusest kaugusega spektrite põhjal. Kiirguse maksimumi asukoha graafikule pandi vearistid selle graafiku kõvera kõrgema 15% kohtadesse. Sisuliselt on see maksimumi asukoha graafiku külgsuuna.

## Lisa 6. Intensiivsuse ajaline muutumine lämmastikus spektri alusel



## Lisa 7. Näide taustsignaali muutumisest ajas ja ruumis



*Joonis 27: Näide taustsignaali muutumisest ajas ja ruumis spektrite põhjal. Taustsignaal on kõrgeim plasmatomu keskmes ning langeb ajas.*

## **Tänuavaldused**

Ma tänan õppejõudusid, kes mind on harinud ja õpetanud, oma kursusekaaslasi, kes on alati mulle moraalseks toeks olnud ning suur-suur tänu ka Indrek Jõgile, kes meisterlikult mind bakalaureusetöös suunas ja väsimatult tehtu kohta tagasisidet andis. Ma tänan ka Peeter Parist, kes jagas näpunäiteid ja teadmisi laboris töötamiseks.

## **Infoleht**

“Laserindutseeritud plasma ruumiline ning ajaline areng argoonis ja lämmastikus”

Töös uuriti laserindutseeritud plasma spektroskoopia (LIBS) abil, molübdeeni (Mo) ja vesiniku (H) kiirguste ruumilist ja ajalist arengut. Põhiline eesmärk oli uurida, kas kalibratsioonivaba LIBSi üks kasutamise tingimustest, et elementide kiirgused lähtuvad samast ruumipiirkonnast, on täidetud. Lisaks uuriti, mis mõju omab argooni või lämmastiku kasutamine gaasikeskkonnana.

Töö käigus selgus, et H ja Mo kiirgused lähtuvad eri ruumipiirkondadest. Seetõttu kalibratsioonivaba LIBSi kasutamisel uuritud parameetrite juures on mõõteviga suur. Selgus ka, et parima tulemuse annab katsete läbiviimine argoonis madalal rõhul.

Märksõnad: LIBS, molübdeen, vesinik, spektroskoopia

CERCS kood: P240 - Gaasid, vedelike dünaamika, plasma

“Spatial and temporal dynamics of laser-induced plasma in argon and nitrogen environment”

Spatial and temporal development of molybdenum (Mo) and hydrogen (H) radiation was investigated using laser-induced breakdown spectroscopy (LIBS). The main goal was to investigate whether Mo and H radiation originated from the same location, therefore fulfilling a requirement for the use of calibration-free LIBS. Moreover, the effect of using argon or nitrogen was investigated.

In conclusion, Mo and H radiations were emitted from spatially different locations. Therefore using calibration-free LIBS in the range of investigated parameters yields a large measurement error. Secondly, the best result was gained by using argon at low pressures.

Keywords: LIBS, molybdenum, hydrogen, spectroscopy

CERCS code: P240 - Gases, fluid dynamics, plasmas

## **Lihtlitsents lõputöö reprodutseerimiseks ja üldsusele kättesaadavaks tegemiseks**

Mina, Jasper Ristkok,

1. annan Tartu Ülikoolile tasuta loa (lihtlitsentsi) minu loodud teose  
“Laserindutseeritud plasma ruumiline ning ajaline areng argoonis ja lämmastikus”,  
mille juhendaja on Indrek Jõgi,  
reprodutseerimiseks eesmärgiga seda säilitada, sealhulgas lisada digitaalarhiivi DSpace kuni autoriõiguse kehtivuse lõppemiseni.
2. Annan Tartu Ülikoolile loa teha punktis 1 nimetatud teos üldsusele kättesaadavaks Tartu Ülikooli veebikeskkonna, sealhulgas digitaalarhiivi DSpace kaudu Creative Commons'i litsentsiga CC BY NC ND 3.0, mis lubab autorile viidates teost reprodutseerida, levitada ja üldsusele suunata ning keelab luua tuletatud teost ja kasutada teost ärieesmärgil, kuni autoriõiguse kehtivuse lõppemiseni.
3. Olen teadlik, et punktides 1 ja 2 nimetatud õigused jäävad alles ka autorile.
4. Kinnitan, et lihtlitsentsi andmisega ei riku ma teiste isikute intellektuaalomandi ega isikuandmete kaitse õigusaktidest tulenevaid õigusi.

Jasper Ristkok

31.05.2019